

## テラヘルツ時間領域分光法の高速化

安井 武史

大阪大学大学院基礎工学研究科

e-mail: t-yasui@me.es.osaka-u.ac.jp

http://sml.me.es.osaka-u.ac.jp/

テラヘルツ領域(周波数 = 0.1~10 THz; 波長 = 30~3000  $\mu\text{m}$ )は、ちょうど光波と電波の境界に位置し、これまで良質なレーザー光源や高感度検出器が無かったため、ほとんど研究が行われていない未開拓電磁波領域であった。しかし、最近の安定な超短パルスレーザーの出現と超高速デバイス技術の発達により、パルス状のTHz波(以下THzパルスと略す)が比較的容易に生成・検出できるようになってきたため、以下に示す特徴と相まって新たな応用展開が活発になっている。THzパルスは、光波と電波の境界に位置するということから、その両者の性質を有するユニークな電磁波である。具体的には、(1)自由空間伝搬、(2)非金属材料に対する良好な物質透過性及び低散乱性、(3)極低エネルギー・極低侵襲性、(4)コヒーレントビーム、(5)超短パルス特性、(6)広帯域スペクトル、(7)イメージング測定や分光測定が可能、といった特徴を有する。近年、THz領域においてビタミン・糖・医薬品・農薬・禁止薬物・プラスチック爆弾・ガン組織を始めとした様々な物質が固有の吸収スペクトル(THz指紋スペクトル)を示すことが明らかになり、このTHz指紋スペクトルを利用したTHz分光法が新しいセンシング手段や品質評価手段として注目されている。

THzパルスを用いた代表的分光法であるTHz時間領域分光法(THz-TDS)では、まずTHzパルス電場の時間波形を取得し、それをフーリエ変換することにより振幅と位相のフーリエ・スペクトルを得る。しかし現状では、THzパルス電場の時間波形を直接的に実時間測定は不可能なため、ポンプ・プローブ法により間接的に時間波形を取得しなければならない(図1及び図2)。ポンプ・プローブ法では、フェムト秒レーザー光をTHz発生用ポンプ光とTHz検出用プローブ光に分岐し、ポンプ光をTHz発生素子(光伝導アンテナや非線形光学結晶など)に入射することによりTHzパルスが発生する。ここで、機械式ステージによる光路長変化(機械式時間遅延走査)をプローブ光に与えると、THz検出素子(光伝導アンテナや電気光学結晶など)に入射するTHzパルスとプローブ光のタイミングが変わり、プローブ光のパルス時間幅で切り出された各タイミングにおけるTHz振幅値を得ることができる。そして、プローブ光に、順次、光路長変化(時間遅延)を与え、異なるタイミングでのTHz振幅値を同一の時間軸上にプロットすることで、THzパルスの電場時間波形を再現することができる。時間軸はステージ移動量(光路長変化量)と光速から算出する。振幅及び位相のフーリエ・スペクトルは、THz電場時間波形をフーリエ変換することによって得る。THz-TDSにおけるスペクトル分解能は測定時間窓の逆数、スペクトル・レンジは時間波形のサンプリング間隔(時間分解能)の逆数でそれぞれ決定される。このような機械式時間遅延走査とフーリエ変換に基づいた従来法では、スペクトル分解能向上と測定時間短縮がトレードオフの関係にある上に(高いスペ

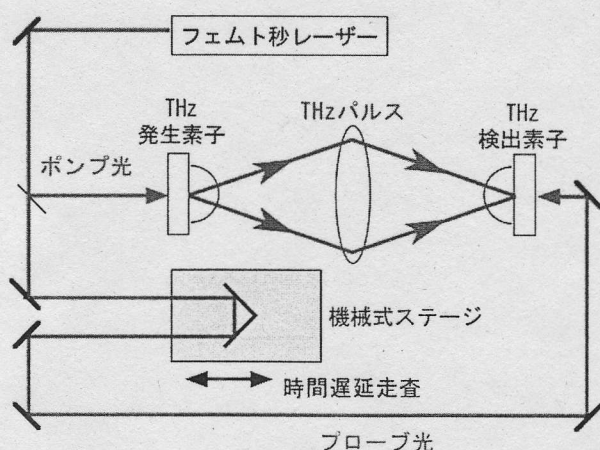


図1 実験配置(従来THz-TDS)

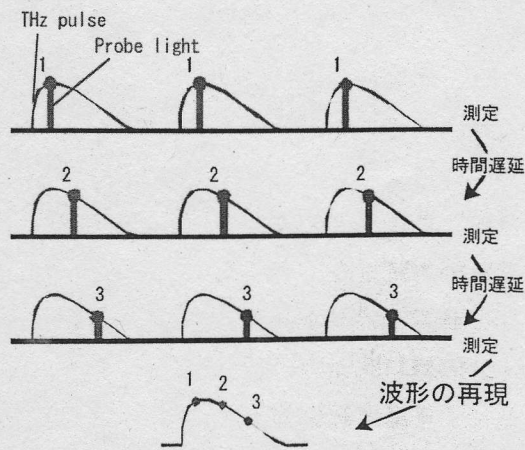


図2 測定タイミングチャート(従来THz-TDS)

クトル分解能を得るには長いステージ移動が必要となるため測定時間が長くなる)、時間遅延走査ステージの移動量を基準にスペクトルの目盛り付けを行うため高精度な分光計測が困難であった (THz-TDS でよく用いられるステッピングモーター駆動式ステージの位置決め精度は概して低い)。

我々は、このような従来法の問題点を解消する手段として非機械式高速時間遅延走査が可能な非同期光サンプリング法 (AOS 法) に着目し、これに基づいた高速 THz-TDS (AOS-THz-TDS) の研究を行っている [1]。測定装置とタイミングチャートを図 3 及び図 4 に示す。AOS-THz-TDS では、モード同期周波数がわずかに異なるように制御された 2 台の独立したフェムト秒レーザーを用いる (モード同期周波数差  $=\Delta f = f_1 - f_2$ )。2 台のレーザーを THz 発生用ポンプ光と THz 検出用プローブ光の各々に用いると、パルス周期がわずかに異なるので、THz パルス (モード同期周波数  $f_1$ ) とプローブ光 (モード同期周波数  $f_2$ ) が THz 検出素子で重なるタイミングがパルス毎に自動的にずれていく。すなわち、機械式ステージを用いることなく自動的に波形全体をサンプリング測定することになり、時間的に拡大された THz 時間波形信号はオシロスコープで直接観測できる [時間スケール拡大率  $= (1/\Delta f)/(1/f_1) = f_1/\Delta f$ ]。このような AOS-THz-TDS により機械式ステージが省略でき、高速時間遅延走査が可能となる (走査周期は  $1/\Delta f$ )。時間波形のサンプリング間隔 (時間分解能) は  $S = 1/f_2 - 1/f_1 = \Delta f/(f_1 f_2)$  であるので、スペクトル・レンジは  $F_{\text{range}} = 1/S = f_1 f_2/\Delta f$  となる。本手法では、常にパルス周期に等しい測定時間窓 ( $= 1/f_1$ ) を得ることができるので、スペクトル分解能は THz-TDS の理論限界値であるモード同期周波数 ( $= 1/f_1$ ) となる。

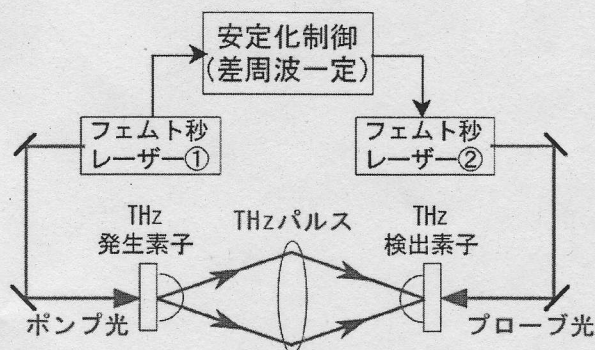


図 3 実験配置 (AOS-THz-TDS)

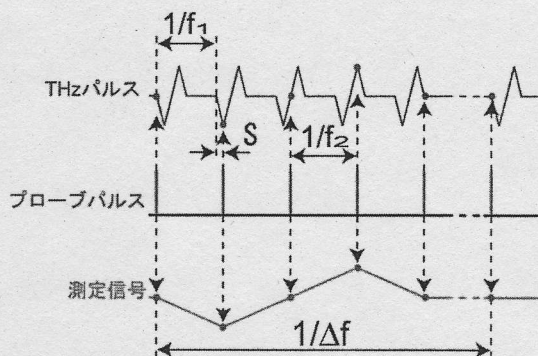


図 4 測定タイミングチャート (AOS-THz-TDS)

AOS-THz-TDS では、THz パルス発生用ポンプレーザー (モード同期周波数  $=f_1$ ) と THz パルス検出用プローブレーザー (モード同期周波数  $=f_2$ ) の各々のモード同期周波数を安定化すると同時に、両レーザーのモード同期周波数の差周波 ( $\Delta f = f_1 - f_2$ ) が任意の値で一定となるようにレーザー制御を行う必要がある (非同期光サンプリング光源)。さらに、AOS-THz-TDS における時間スケール拡大率 ( $f_1/\Delta f$ ) を安定かつ任意に設定するためには、モード同期周波数差 ( $\Delta f$ ) を安定化かつ可変化するためのレーザー制御が必要である。そこで、各々のレーザーのモード同期周波数 ( $f_1, f_2$ ) を独立に高安定化すると同時に、差周波 ( $\Delta f$ ) を任意に選択しかつ高安定化できる制御システムを開発した (図 5)。ポンプレーザー光の一部は超高速光検出器によって検出される。次に、モード同期周波数の変動を拡大するため、ルビジウム周波数標準 (精度  $5 \times 10^{-11}$ 、安定度  $2 \times 10^{-11}$ ) を外部同期信号に用いた周波数シンセサイザー ( $\text{freq.} = 8.18 \text{GHz}$ ) とヘテロダイン検波することにより、モード同期周波数の第 100 次高調波成分を 250kHz 程度のビート信号として抽出する。さらに、ルビジウム周波数標準にロックした任意波形発生器からの信号を参照信号 ( $\text{freq.} = 250 \text{kHz}$ ) として用いた PLL 回路と共振器ミラー取付けピエゾ素子でレーザー共振器長を制御することにより、モード同期周波数の安定化制御を行う。一方、プローブレーザーのモード同期周波数も、ポンプレーザーと同様な制御システムを用いて安定化を行う。その結果、ポンプレーザー及びプローブレーザーのモード同期周波数 ( $f_1, f_2$ ) は 2 つの独立した制御系でルビジウム周波数標準と同レベルまでそれぞれ高安定化される。ここで、同一のルビジウム周波数標準を外部基準としお互い位相ロックされた 2 台の任意波形発生器から供給される PLL 用参照信号にわずかな周波数オフセットを与えれば、差周波 ( $\Delta f = f_1 - f_2$ ) を任意に選択することが可能になる (図 5 では 100Hz)。本制御システムでは、独立した 2 つの制御ループを用いた差周波の安定化において周波数シンセサイザーの周波数変動が相殺されるので、極めて高いレベルで差周波が安定化できる。その結果、差周波の安定度で制限される両レーザーの最小周波数差 ( $\Delta f$ ) を極めて小さい値まで設定可能となる。

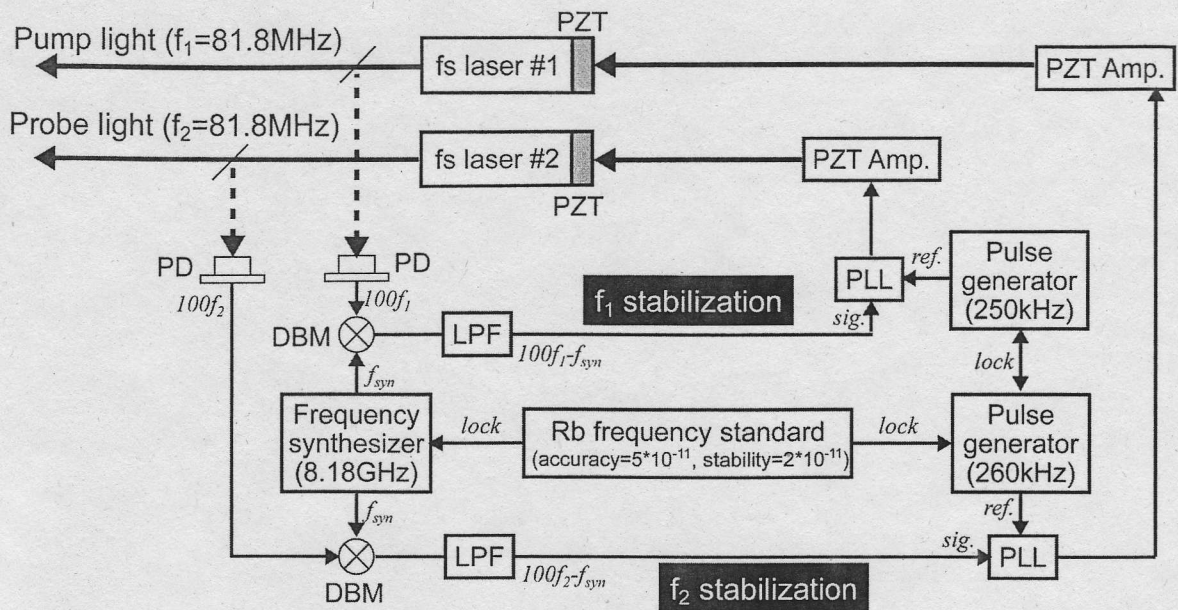


図5 フェムト秒非同期光サンプリング光源. PZT: ピエゾ素子, PD: 超高速光検出器, DBM: ダブル・バランス・ミキサー, LPF: ローパス・フィルター, PLL: フェーズ・ロック・ループ.

図6は、フリーランニング状態と安定化制御状態におけるポンプ光及びプローブ光のモード同期周波数 ( $f_1, f_2$ ) 及び両レーザーの差周波 ( $\Delta f$ ) の安定度を示している。 $f_1$  と  $f_2$  に関しては、安定化制御状態ではルビジウム周波数標準 ( $2 \times 10^{-11}$ @1sec,  $1 \times 10^{-11}$ @10sec,  $2 \times 10^{-12}$ @100sec) と同程度の安定性が実現されており、安定化制御システムにより周波数安定度が大幅に向上していることが分かる。一方、 $\Delta f$  に関しては、フリーランニング状態で数 Hz オーダーの変動が、安定化制御により  $10 \mu\text{Hz}$  オーダーまで抑制されている (ゲート時間 1 秒)。ポンプ光とプローブ光のモード同期周波数の最小周波数差は  $\Delta f$  の変動によって制限されるので、 $100 \mu\text{Hz}$  オーダーの差周波設定も可能である。

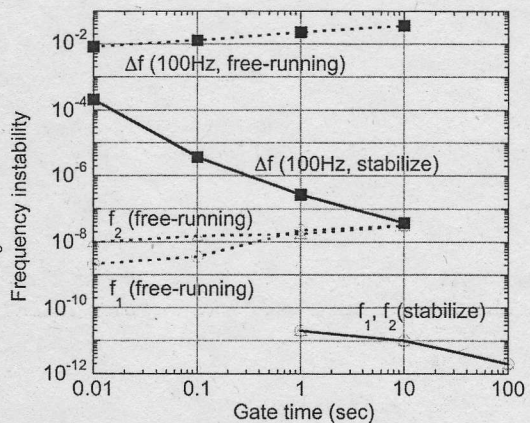


図6 レーザー周波数安定度

実際に開発した AOS-THz-TDS 装置を図7に示す。AOS-THz-TDS では、非同期光サンプリング光源、SFG (和周波発生光) 相互相関測定部、THz-TDS 部という三つの要素から構成されている。非同期光サンプリング光源から出力されるレーザー光の一部はビームスプリッターで抽出され、SFG 相互相関測定部に導かれる。SFG 相互相関測定部では、2つのレーザー光を非線形光学結晶に非共軸入射することによって発生した SFG 相互相関信号光を光電子増倍管で検出し、電流—電圧変換アンプで増幅した後、AOS-THz-TDS における時間原点信号として利用する。THz-TDS 部では、非同期光サンプリング光源からの2つのレーザー光を THz 発生用ポンプ光及び THz 検出用プローブ光としてそれぞれ利用する。THz パルスの発生および検出には、光伝導アンテナを使用した。AOS 法の原理に基づき時間的に拡大された THz パルス電場時間波形は、SFG 信号をトリガーとしたデジタル・オシロスコープ (電圧分解能 8 ビット、 $2.5 \times 10^6$  サンプル/秒) もしくは高速デジタイザー (電圧分解能 14 ビット、 $10^8$  サンプル/秒) によって直接測定される。従来の THz-TDS 装置では必須の時間遅延走査用機械式ステージとロックイン増幅器が省略されていることが分かる。

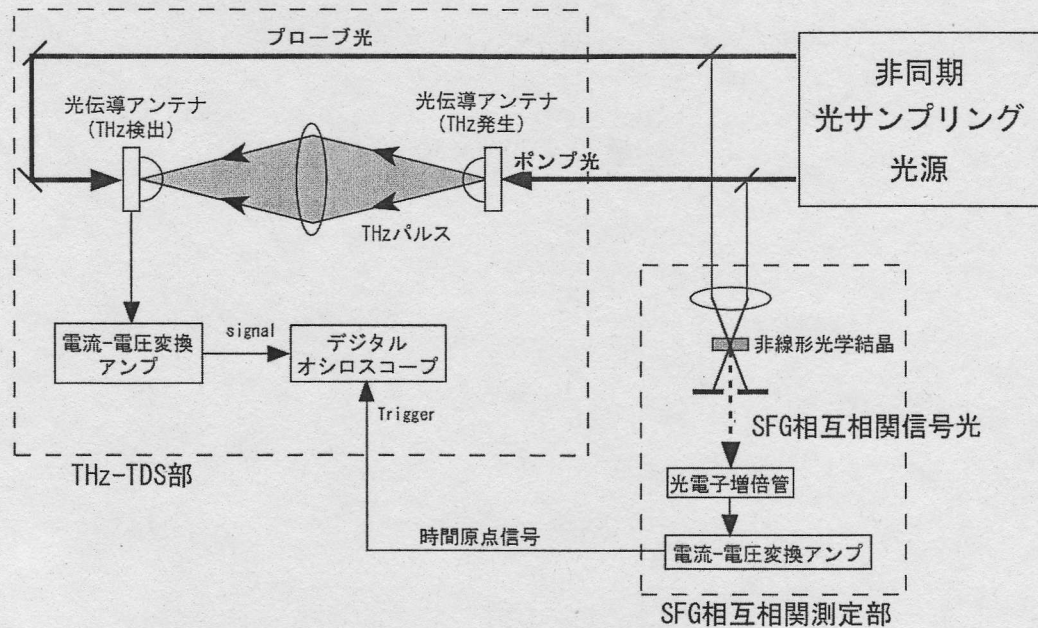


図7 AOS-THz-TDS 装置

まず、上述の AOS-THz-TDS 装置の THz 発生及び検出にボウタイ型光伝導アンテナを用いて実験を行った。図 8(a)はパルス周期に等しい測定時間窓で取得した THz パルスの電場時間波形である。非同期光サンプリング法の原理により、時間的にスケール拡大された時間波形（時間スケール拡大率 $=f_1/\Delta f=818,000$ ）をデジタル・オシロスコープで直接測定した（1000 回積算、測定時間 10 秒、データ数 25000 点）。実際のオシロスコープの時間スケールはグラフ上側に示されている。図 8(b)は図 8 (a)の時間スケールを拡大し、測定時間窓 100ps で THz パルスの電場時間波形を示したものである。THz 発生及び検出に狭帯域スペクトル特性を有するボウタイ型光伝導スイッチを用いているためパルス幅が広がっているが、THz パルスの電場時間波形が確認できる。図 8(c)は従来の THz-TDS 装置（時間遅延動作ステージ及びロックインアンプを使用）により得た THz 時間波形である（測定時間 5 分、データ数 256 点）。図 8(b)と図 8 (c)の比較から、AOS-THz-TDS によって THz パルス波形が正確に取得できていることが確認できる。従来法では機械式ステージを用いて時間遅延走査を行うため時間遅延量の増大に伴い測定時間も増大するが [図 8 (a)と同スケールの時間波形を得るためには 5 分\*120 倍=10 時間が必要]、AOS-THz-TDS では時間遅延量に依存せず常に一定時間（この場合 10 秒）で測定可能であり、大幅な測定時間短縮が実現できている。

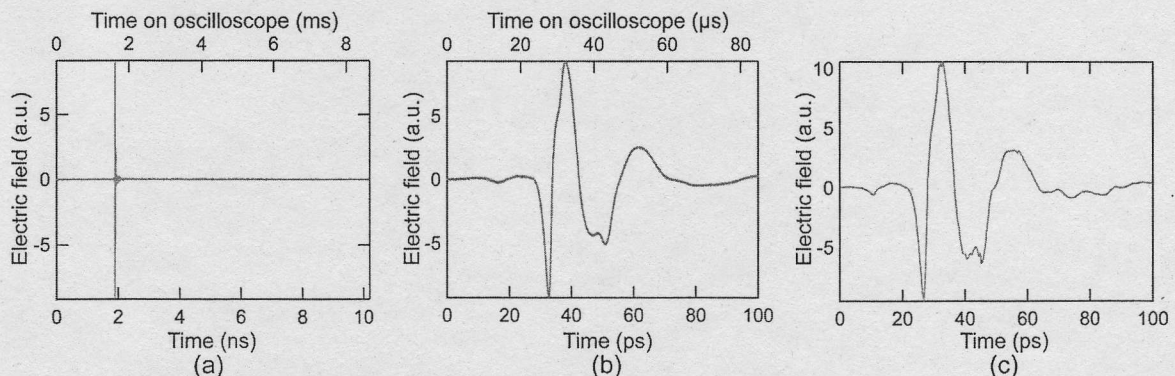


図 8 THz パルス電場時間波形の比較。(a)AOS-THz-TDS (時間窓パルス周期)、(b) AOS-THz-TDS (時間窓 100ps)、(c) 従来法 (時間窓 100ps)

図 9(a)は、10 回積算（測定時間 100ms）、100 回積算（測定時間 1s）、1000 回積算（測定時間 10s）を行った場合の THz パルスの電場時間波形を示している。高速積算化処理により測定 SN 比が向上している様子が確認できる。また、図 9(b)は積算処理を行わずスムージング処理のみ行った場合の THz パルス波形を示

しており、単一スイープ（測定時間 10ms）でも信号波形取得が可能なが分かる。

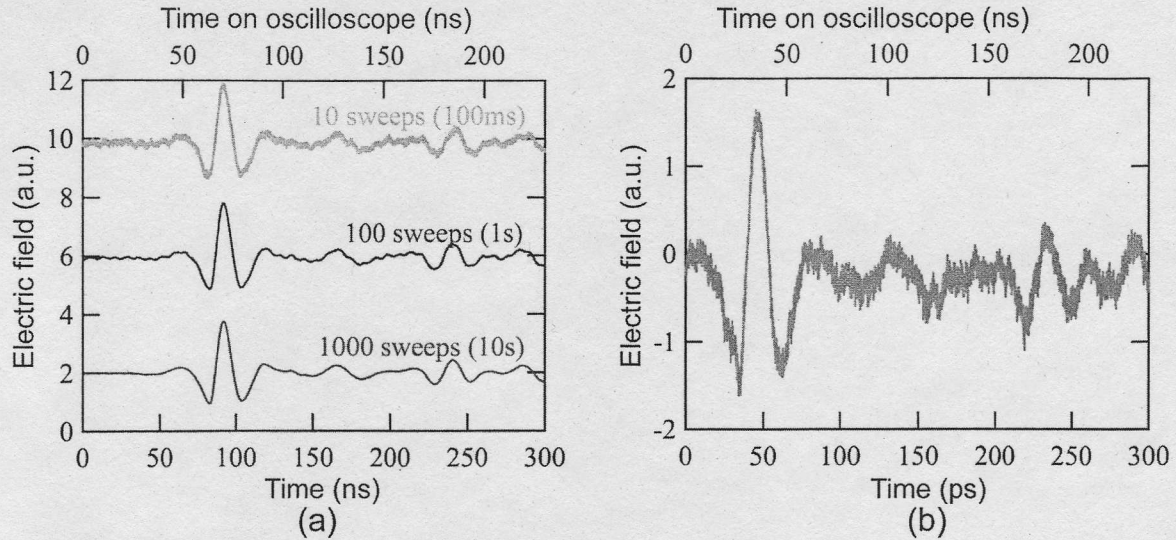


図9 THzパルス時間波形における積算効果。(a)積算あり、(b)積算なし。

THz-TDSでは、THzパルスの電場時間波形を測定し、それをフーリエ変換することにより、振幅及び位相の周波数スペクトル（フーリエ・スペクトル）を得る。図8(a)の電場時間波形（測定時間窓=パルス周期=12.2ns）をフーリエ変換して得られた振幅スペクトルを図10(a)に示す。グラフ上側の水平座標はオシロスコプの時間スケールをフーリエ変換して得られた周波数スケールを示しており、下側の水平座標は時間スケール拡大率により校正された実際の周波数スケールを示している。THz発生及び検出に狭帯域スペクトル特性を有するボウタイ型光伝導スイッチを用いているためスペクトル範囲が0.5THz以下に制限されているが、THz振幅スペクトルが詳細に測定できていることが確認できる（スペクトル分解能81.8MHz）。比較のため、従来法の図8(c)の電場時間波形をフーリエ変換して得た振幅スペクトルを図10(b)に示す（スペクトル分解能10GHz）。両者を比較するとAOS-THz-TDSによりスペクトル分解能が大幅に向上していることが分かるが、これは両者の測定時間窓の違いに起因している。従来法でも十分に長い機械式ステージ（スペクトル分解能81.8MHzを達成するためには1.8mのストロークが必要）により時間遅延走査を行えば同様のスペクトル分解能は可能であるが、非常に長い測定時間（10時間以上）を必要とする。それに対してAOS-THz-TDSでは、極めて短時間でTHz-TDSの理論限界スペクトル分解能（=モード同期周波数=81.8MHz）が実現可能である。

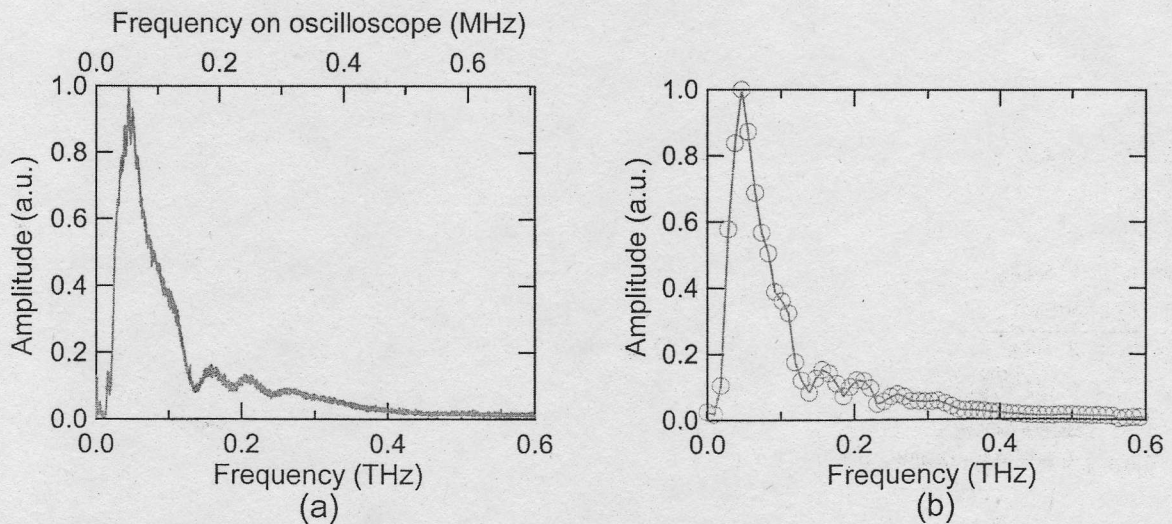


図10 THz振幅スペクトルの比較。(a)AOS-THz-TDS（時間窓12.2ns）、(b)従来法（時間窓100ps）

次に、THzスペクトルの広帯域化を実現するため、THz発生素子及びTHz検出素子をダイポール型光伝

導アンテナに変更した。同時に、フェムト秒非同期光サンプリング光源のモード同期周波差を10Hz（従来は100Hz）とすることにより、AOS-THz-TDSの時間スケール拡大率を8,180,000倍（従来は818,000倍）まで拡大した。その結果、現状のTHz検出エレクトロニクスの周波数帯域内（1MHz）で最大8THz（従来は0.8THz）までのTHzスペクトルが測定可能になる。図11(a)は測定されたTHz電場時間波形（測定時間窓50ps、1000スイープ）を示しており、図8(b)と比較するとパルス幅が大幅に短縮化されていることが分かる。この時間波形をフーリエ変換して得られた振幅スペクトルが図11(b)であり、スペクトル帯域が2THz付近まで拡大できていることが確認できる。

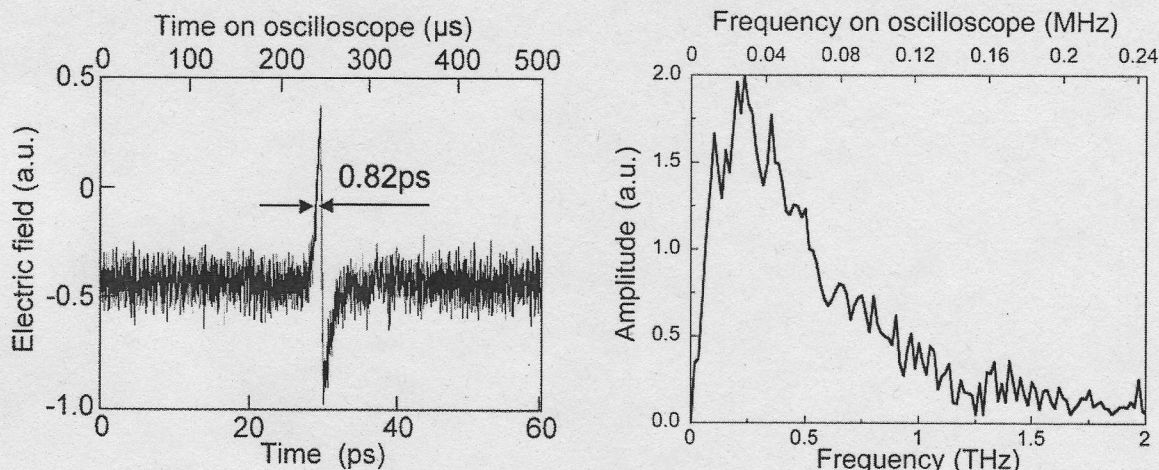


図11 THzスペクトルの広帯域化。(a)電場時間波形、(b)振幅スペクトル。

このようなAOS-THz-TDS法は高速・高スペクトル分解能という特徴以外に、汎用性が高いという側面も持つ。例えば、今回用いたモード同期チタン・サファイアレーザーに替わり、小型化可能なモード同期ファイバーレーザーを光源として用いれば、極めて実用的なTHz分光装置となる(図12)。すなわち、2台のモード同期周波数安定化ファイバーレーザーの出力を光ファイバーでTHz発生用及びTHz検出用光伝導アンテナに直接カップリングすると、従来のTHz-TDSでは必須の機械式時間遅延走査機構やレーザー光の自由空間光学系が省略できる。その結果、光源も含めて、コンパクト・堅牢・安定・メンテナンスフリー・安価といった実用性を兼ね備えた『誰でも何処でも使える』THz分光装置が可能になる。

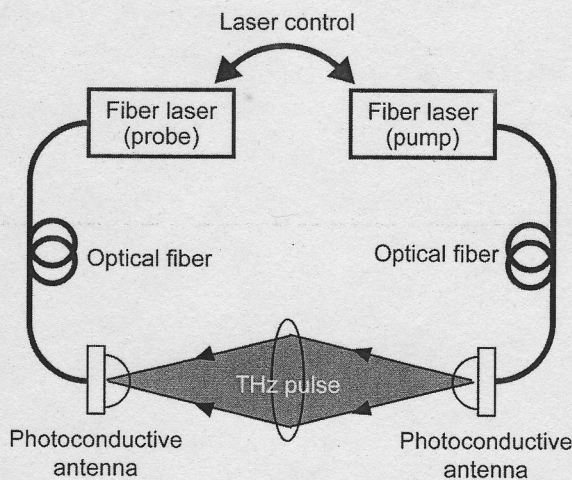


図12 汎用AOS-THz-TDS装置

まとめとして、非同期光サンプリング法に基づいた非機械式高速時間遅延走査により、これまでのTHz-TDSで問題とされた測定時間短縮とスペクトル分解能向上のトレードオフを解消した。その結果、理論限界スペクトル分解能(=モード同期周波数)を短時間で達成することに成功した。

参考文献

[1] T. Yasui, E. Saneyoshi and T. Araki, "Asynchronous optical sampling terahertz time-domain spectroscopy for ultrahigh spectral resolution and rapid data acquisition", Appl. Phys. Lett., Vol. 87, 061101 (2005).