

# 差周波混合による連続テラヘルツ電磁波発生 of 広帯域化

Wideband generation of continuous terahertz wave due to difference frequency mixing



**小島 磨 (Osamu KOJIMA, Ph. D.)**  
千葉工業大学 工学部 電気電子工学科 教授  
(Professor, Chiba Institute of Technology, Department of Electrical and Electronic Engineering)  
応用物理学学会 日本物理学会 Optica  
研究専門分野：半導体光物性 超高速分光

## あらまし

テラヘルツ電磁波に関する研究は様々な観点で行われており、本研究では差周波混合法と呼ばれる非線形光学効果に基づいた発生法に着目した。この手法は、連続波で線幅が狭い電磁波を発生させることが可能であるという特徴がある。半導体多重量子井戸に二つのレーザー光を照射することで、テラヘルツ電磁波を発生させるにあたり、複数の多重量子井戸を積層することで、励起準位の重ね合わせによって、電磁波強度が増加することを示した。また、約 7 THz における OHP シートの吸収係数を求めることで、分光装置として使用できる可能性を示した。

## 1. 研究の目的

近年、テラヘルツ電磁波に関する研究はますます盛んになっており、情報通信への応用も間近と言えるが、その発生に関する研究の多くは超短パルスを用いたパルス状の電磁波発生であり、量子カスケードレーザー以外で連続波を発生させた例は数少ない。一方、我々は、これまでに半導体多重量子井戸中の励起子(電子と正孔の弱束縛状態)を共鳴励起することで差周波混合によるテラヘルツ電磁波を連続発生させる研究を行ってきた[1]。この実験では、励起子エネルギー近傍で共鳴的に電磁波強度が増強される一方で、高次の遷移をも使用することで約 20 THz にわたって広帯域で連続波のテラヘルツ電磁波発生が可能であることを示した。

この成果を、例えば、波長多重通信に向けた光源として使用するためには、さらなる励起子共鳴領域の広帯域化が必要となると考えた。そこで、本研究では、厚さが異なる量子井戸を重ねることで、広帯域に渡って強度を維持することを目指した。そのために、厚さが異なる量子井戸を積層した試料を用いて、差周波混合によるテラヘルツ電磁波を観測し、広帯域化を実証することを目的として研究を行った。

## 2. 研究の背景

テラヘルツ電磁波発生に関する研究の多くは、超短パルスレーザーで半導体基板上に作製されたダイポールアンテナを励起するものである。そのため、パルス状のスペクトル幅(バンド幅)が広いテラヘルツ電磁波が発生する。一方、連続波のテラヘルツ電磁波発生については、量子カスケードレーザーが精力的に研究されており、既に製品としても発売されており、応用を考えた場合の重要なパラメータであるビーム品質についても優れていると考えられる。しかしながら、発振周波数を自在に変えることが難しい点は、唯一のデメリットと言える。また、差周波混合では、上述のダイポールアンテナにレーザーを照射したものや有機非線形結晶(いわゆる DAST 等)に照射して発生させた例が報告されている。これらの研究では格子振動による高周波数側での強度の低下が観測されている。

それに対し、以前の我々の報告[1]では、そのようなそのような強度の極端な減少が観測されなかった。これは、差周波混合過程に対する格子振動の影響が小さ

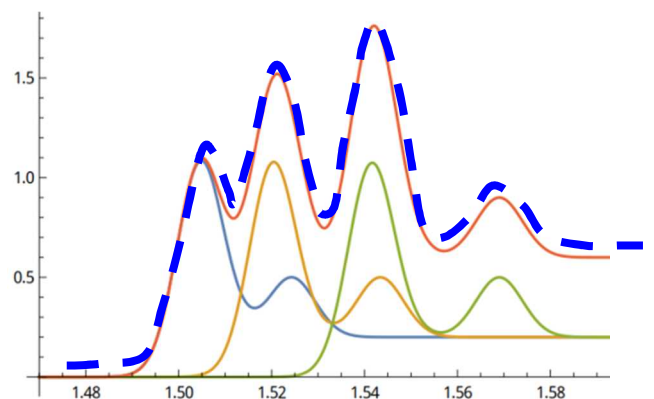


図 1 試料構造の設計案

# 差周波混合による連続テラヘルツ電磁波発生 of 広帯域化

## Wideband generation of continuous terahertz wave due to difference frequency mixing

いと考えられ、その理由として、差周波混合が励起子の干渉に基づいていることに起因すると考えている。つまり、従来の差周波混合では、レーザー光の照射によって生じるキャリアの拡散が非線形分極の源であるためにテラヘルツ電磁波強度の低下が生じていたが、本研究の方法では、量子井戸内に閉じ込められた励起子の干渉が非線形分極の源となると考える。特に、室温での実験であるため、励起子の位相緩和時間が極端に短く、格子振動のサイクルと同程度かそれ以下の時間であると考えられる。これらの要因が、格子振動による強度の減少を低減できた起源と考えている。しかしながら、依然として、電磁波強度が小さいため、さらなる増強手法が必要な状況にある。

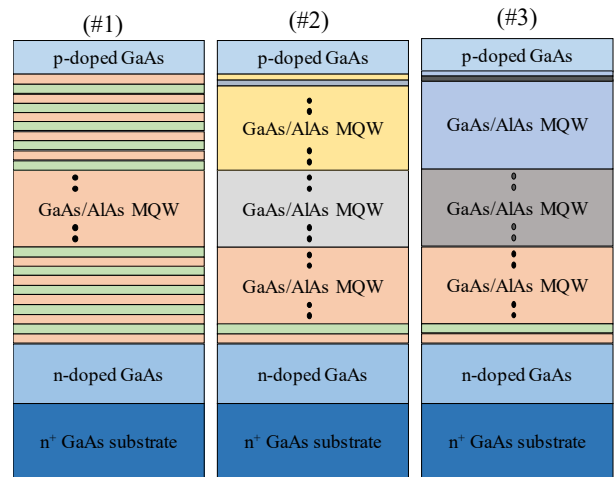


図 2 作製された試料構造の模式図 [2]

### 3. 研究の方法

前述のように、これまでの実験では、テラヘルツ電磁波強度は、励起子エネルギーで共鳴的なピークを示していた [1]。そこで、厚さが異なる複数の多重量子井戸を重ねた構造を設計した。その設計のコンセプトを図 1 に示す。3 つの多重量子井戸の励起子状態をこのように重ね合わせることによって、幅広い周波数領域に渡って強度を保つことができるようになる考えた。

このようなコンセプトで設計した試料は、英国グラスゴー大学に設置された分子線エピタキシー装置によって作製された。作製された試料構造の模式図を、図 2 に示す [2]。ここでは、各構造の詳細は割愛するが、#1 は参照試料であり、井戸層と障壁層の幅が 7.25 nm であり、30 回繰り返し成長して積層したものである。#2 と #3 はそれぞれ厚さが異なる 3 つの多重量子井戸を積層したものであり、#2 は 7.25 nm の多重量子井戸を基板側に作製した後、重い正孔励起子と軽い正孔励起子の中心に次の多重量子井戸の重い正孔励起子エネルギーとなるように設計された。また、#3 の試料では、同じく基板側の 7.25 nm の量子井戸の軽い正孔励起子のエネルギーが次の多重量子井戸の重い正孔励起子エネルギーと一致するように設計した。すべての試料は pin 構造となっており、i 層に多重量子井戸を配することで、外部から電圧を与えなくても、すべての多重量子井戸に電場が印加された状態となっている。

これらの試料を用いて、差周波混合によるテラヘルツ

電磁波を観測するために、二つの半導体レーザーを光源に用い、試料に照射した。その光学系を図 3 に示す。従来の実験 [1] では、二つのレーザー光をハーフミラー上で重ね合わせていたが、その場合、重なりを保証して再現性を維持することが難しかった。そこで、結合光ファイバーを用いて、二つのレーザー光を一つにして、レンズを介して試料に光を照射した。発生したテラヘルツ電磁波は、後方散乱方向に発生したものを焦電型検出器で検出した [2]。検出器からの信号をロックイン増幅器を使って増幅して、パソコンで記録した。

図 4 に、様々な励起光強度で測定したテラヘルツ電磁波強度の周波数依存性を示す [2]。この実験では、一つのレーザー光のエネルギーを 7.25 nm の多重量子井戸の重い正孔励起子に一致させ、もう一つの半導体レーザーのダイオードの温度を変えることで、レーザー光のエネルギーを様々に変えた。丸印は試料 #1、四角

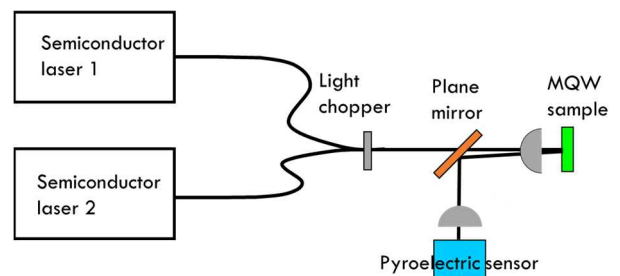


図 3 差周波混合によるテラヘルツ電磁波測定系 [2]

# 差周波混合による連続テラヘルツ電磁波発生 of 広帯域化

Wideband generation of continuous terahertz wave due to difference frequency mixing

形は試料#2、そして三角形は試料#3 で測定した結果を示している。したがって、丸印の結果が、以前の結果[1]に相当するとみなすことができる。

この図において、#2 と#3 の結果は、すべての励起光強度において、#1 よりも大きな信号強度を示している。つまり、構造が異なる多重量子井戸を積層することで、信号強度が増加したと考えられる。また、#2 と#3 でも依存性が異なっており、これは励起準位の重ね合わせの条件が異なることに起因しているといえる。約 6 THz 近傍に 7.25 nm の多重量子井戸における軽い正孔励起子の準位があり、#3 の試料では、2 番目の多重量子井戸の重い正孔励起子がこれと一致している。このように励起準位を一致させることで、信号強度が増加していると考えている。

図 5 は、試料#3 を使って、発生したテラヘルツ電磁波の周波数を測定した結果である[2]。これは、図 3 の光学系において、検出器の前にシリコン基板 2 枚から構成されるファブリ-ペロー干渉計を構築して、一方のシリコン基板をモーターステージを使って動かし、多重反射に起因する信号強度の変化を観測した結果である。この実験におけるレーザー光のスペクトルを挿入

図に示している。2 つのレーザー光のピークエネルギーの差から見積もった電磁波の周波数は 5.34 THz である。なお、図 4 の横軸はこのように、レーザー光のスペクトルから求めた値を使っている。

干渉信号の周期をフィッティングによって求めたところ、 $28.15 \pm 0.82 \mu\text{m}$  であった。この値を電磁波の周波数に変換すると  $5.33 \pm 0.15 \text{ THz}$  となる。この値は、レーザーのスペクトルから求めた値とほぼ一致しており、この干渉信号がテラヘルツ電磁波の多重反射に起因していることを示すとともに、図 4 における信号がテラヘルツ電磁波によるものであることも示している。

最後に、このテラヘルツ電磁波を分光に応用する可能性を議論するために行った実験結果[2]について、説明する。図 6 は、検出器の前に市販の OHP シートを置いてテラヘルツ電磁波強度を測定した結果である。横軸は OHP シートの厚さであり、これは約  $100 \mu\text{m}$  の厚さのシートを重ねることで制御した。したがって、この図は、検出される電磁波強度が OHP シートの枚

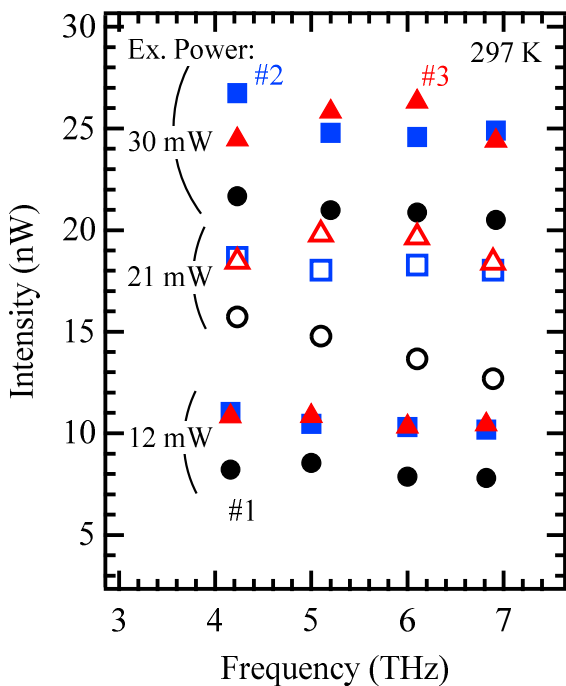


図 4 テラヘルツ電磁波強度の周波数依存性[2]

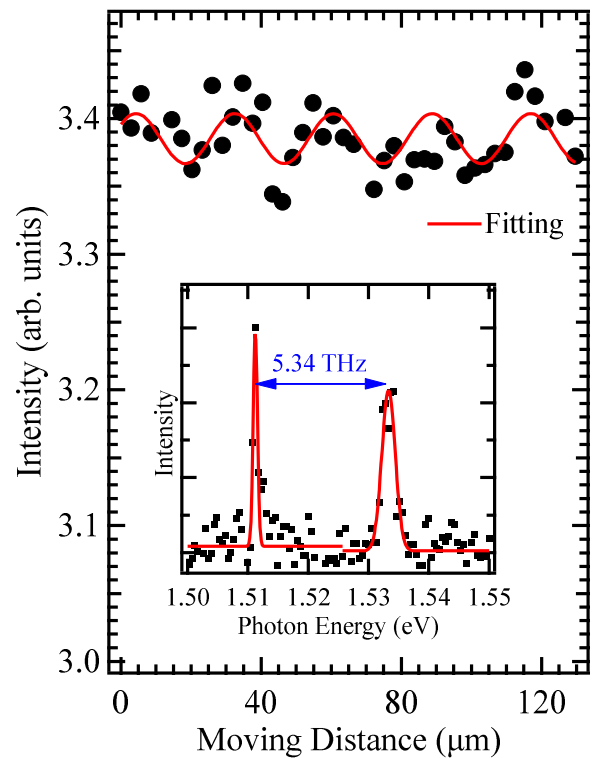


図 5 テラヘルツ電磁波強度の周波数測定結果。挿入図はレーザーのスペクトルを示す[2]

# 差周波混合による連続テラヘルツ電磁波発生 of 広帯域化

## Wideband generation of continuous terahertz wave due to difference frequency mixing

数に応じて変化することを表している。この実験は、#3 の試料を用いて、約 7 THz の電磁波が発生している条件で、大気中にて行った。この実験結果を解析した結果、この周波数における OHP シートの吸収係数がおよそ  $30 \text{ cm}^{-1}$  と求まった。フーリエ変換赤外分光高度計で 10 から 100 THz の吸収係数を測定した結果は、20 から  $60 \text{ cm}^{-1}$  であることから、この  $30 \text{ cm}^{-1}$  という値は、妥当なものであると考えている。したがって、この差周波混合によるテラヘルツ電磁波を分光の光源に用いることが可能であることを示せたと考える。なお、図 6 の実験結果は、理想的には強度が 0 に向かって減少するはずであるが、実験結果には 0.3 程度のベースラインが存在している。このベースラインを取り除く、もしくはベースラインが測定に影響しない程度に大きな電磁波強度が得られれば、より高精度な分光が可能になると期待している。

### 4. 将来展望

本研究で注目している差周波混合によるテラヘルツ電磁波は、単色性が高いという特徴がある。発生する電磁波の線幅は励起に用いるレーザーの線幅で決定さ

れるため、本研究で発生している電磁波は 0.1 THz 程度の線幅と考えられる。したがって、さらに線幅が狭い励起光源を用いることで、より高精度な分光が可能になると考えている。特に、テラヘルツ電磁波を使った分光測定で課題となるのが、大気中の水蒸気による吸収である。そのため、一般的なテラヘルツ分光では、例えば、窒素ガスでパージするなどすることがある。それに対して、水の吸収がない周波数を選んで単一の周波数で測定することが可能になれば、屋外での測定が可能になるため、大気中の特定の成分、例えば、有害なガスなど、の検出ができるようになることを期待している。その他、呼気中の特定の分子を検出することで、非接触、非侵襲で病気の早期発見が可能になると予想される。

一方、現時点で発生効率がまだ低く、原理的にも後一桁の強度の向上が可能になると考えている。そのため、この差周波混合によるテラヘルツ電磁波の発生に関する物理をより詳細に解明していきたいと考えている。これまでの励起子ダイナミクスに関する研究の大半は超短パルスを利用した測定であり、フェムト秒からピコ秒オーダーで電子と正孔の移動を議論してきた。それに対して、差周波混合法は連続波レーザーでの励起である。そのため、常に電子と正孔が生成されている。このような状況下における励起子の生成と消滅に関する議論は、パルス励起の場合とは異なっており、新しい物理を発見できると考えている。これまでは、発光スペクトルとポンプ-プローブ信号と比較したり [A]、連続波レーザー光の反射率変化信号を観測したり [B] することで、議論をしてきた。このような基礎物性に関する研究も今後行っていくことで、より高効率なテラヘルツ電磁波発生につなげていきたいと考えている。

### おわりに

本研究では、半導体多重量子井戸を試料に用いて、励起子共鳴励起条件下における差周波混合によるテラヘルツ電磁波を増強する手法として、構造が異なる多重量子井戸を重ね合わせて励起子状態の重ね合わせを利用することを目指した。その結果、重ね合わせによるテラヘルツ電磁波強度の増加を観測することができ

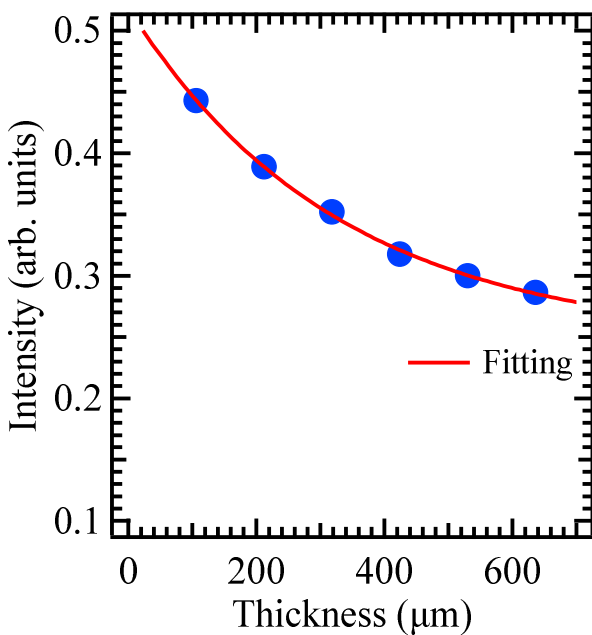


図 6 OHP シート透過後の電磁波強度 [2]

## 差周波混合による連続テラヘルツ電磁波発生 of 広帯域化

Wideband generation of continuous terahertz wave due to difference frequency mixing

た。この手法に加えて、今後は磁場[C]や圧力と言った摂動を利用した増強などに取り組んでいきたいと考えている。

### 参考文献

- [1] O. Kojima, Y. Tarui, H. Shimazu, T. Kita, A. Majeed, P. Ivanov, E. Clarke, R. Hogg, Phys. Rev. Appl. **10**, 044035 (2018).
- [2] K. Sakaue, O. Kojima, T. Kita, M. J. Steer, R. A. Hogg, Opt. Express **29**, 24387 (2021).

### 関連文献

- [A] O. Kojima, T. Kita, M. J. Steer, and R. A. Hogg, AIP Advances **10**, 095016 (2020).
- [B] O. Kojima, T. Kita, M. J. Steer, and R. A. Hogg, J. Phys. D: Appl. Phys. **54**, 335106 (2021).
- [C] O. Kojima, Y. Tarui, T. Kita, A. Majeed, P. Ivanov, E. Clarke, R. A. Hogg, Opt. Express **30**, 11789 (2022).

この研究は、平成30年度SCAT研究助成の対象として採用され、令和元年度～令和2年度に実施されたものです。