



## テラヘルツ周波数コムの発生及び検出

安井 武史

大阪大学大学院 基礎工学研究科 (〒560-8531 大阪府豊中市待兼山町1-3)

### Generation and Detection of Terahertz Frequency Comb

Takeshi YASUI

Graduate School of Engineering Science, Osaka University,  
1-3 Machikaneyama-cho, Toyonaka, Osaka 560-8531

( Received April 30, 2007 )

Femtosecond-laser-based optical frequency comb has received a lot of interest as powerful metrological tools capable of covering the visible to mid-infrared region. However, frequency comb has not been investigated in the long-wavelength terahertz (THz) region. In this paper, the concept of the frequency comb is extended to the THz region. THz frequency comb is suitable for high-accuracy, high-resolution THz spectroscopy, which can be used to identify molecules of interest with fingerprints in the THz region. Multifrequency-heterodyning photoconductive detection was used; it involves using two stabilized Ti:sapphire lasers having slightly mismatched mode-locked frequencies. The detailed structure of a THz frequency comb was clearly observed with a frequency accuracy of  $2.5 \times 10^{-7}$  and a resolution of 81.8 MHz.

**Key Words:** Terahertz, Frequency comb, Femtosecond laser, Photoconductive detection

#### 1. はじめに

テラヘルツ領域 THz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未開拓な電磁波領域とされてきた。しかし、最近の安定なフェムト秒パルスレーザーの出現と超高速光技術の発達によりTHz領域の超短パルス(THzパルス)の発生及び検出が常温で可能になり、この領域の研究開発(THzテクノロジー)が加速している<sup>1)</sup>。THzパルスは、光波と電波の両方の性質を有するユニークな電磁波であり、具体的には、自由空間伝搬、良好な物質透過性及び低散乱性、コヒーレントビーム、極低エネルギー・非侵襲性、超短パルス、広帯域スペクトル、イメージング測定や分光測定が可能、といった特徴を有している。さらに、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特徴的な固有の吸収スペクトル(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<sup>2-4)</sup>。

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、機械式時間遅延走査を用いたポンプ・プローブ法によりTHzパルス電場の時間波形を測定し、それをフーリエ変換することにより振幅と位相の

フーリエ・スペクトルを得る。しかしながらこの手法では、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確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プモーター駆動式ステージの位置決め確度は概して低い)。我々は、フェムト秒モード同期レーザーによって発生させたTHzパルスが周波数領域において安定な周波数コム・スペクトルを示すことに着目し、これを基準にした高確度・高分解なTHzコム分光法に関する研究を行っている<sup>5)</sup>。本解説では、THzコムの発生・検出に関する最近の成果及び将来展望について述べる。

#### 2. 光コムとTHzコム

フェムト秒モード同期レーザーから出力されるレーザー光は、時間領域において非常に安定した高繰返しのモード同期超短光パルス列(モード同期周波数= $f_1$ )を示す(Fig. 1)。一方、フーリエ変換の関係にある周波数領域では、あるオフセット周波数( $=\nu_m$ )を中心として多数の安定な光周波数モード列がモード同期周波数( $=f_1$ )の間隔で規則的に櫛(コム)の歯状で並んだ離散スペクトル構造( $=\nu_m \pm nf_1$ )を有している。このようなスペクトル構造を周波数

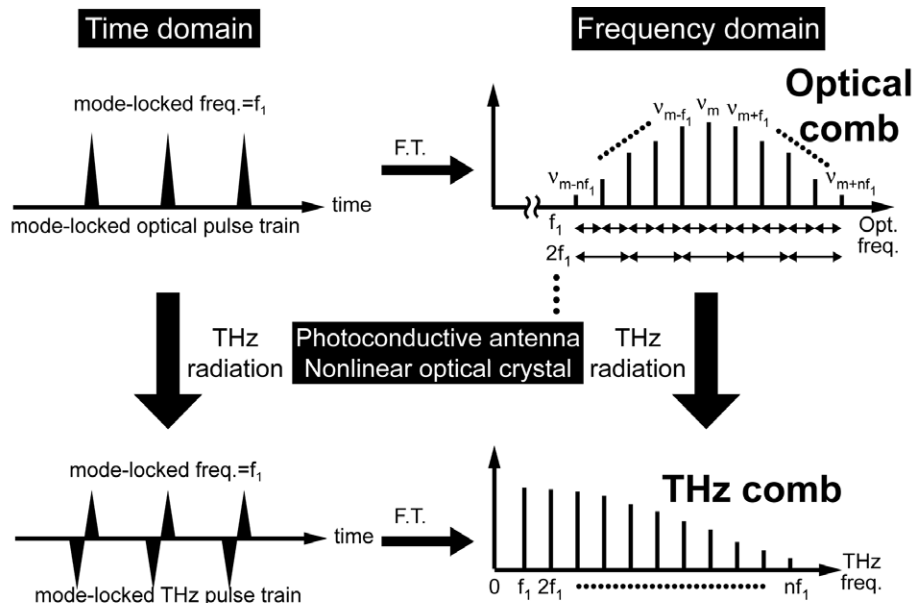


Fig. 1 Optical comb and THz comb.

コムと言い、特にフェムト秒レーザーから発せられた光周波数領域のコムをフェムト秒光周波数コムと呼ぶ。近年、このフェムト秒光周波数コムを「光周波数の物差し」と見立てた超精密分光や周波数標準に関する研究が非常に注目されており<sup>6)</sup>、2005年には関連技術を開発した研究者がノーベル物理学賞を受賞している。このようなフェムト秒レーザー光を光伝導アンテナ（または非線形光学結晶）に照射すると広帯域コヒーレントなTHz波が発生し、時間領域ではフェムト秒レーザー光に同期したTHz領域のモード同期パルス列（モード同期周波数= $f_1$ ）が観測される。一方、周波数領域におけるTHz放射は、光伝導アンテナを介したフェムト秒光周波数コムの超広帯域復調と見なすことができる。すなわち、光周波数コムのオフセット周波数成分（= $v_m$ ）がカットされ、周波数コム全体が同じモード間隔を保ったまま低周波数側へダウン・コンバートされることになる。その結果、モード同期周波数の基本波成

分（= $f_1$ ）と多数の高調波成分（= $2f_1, 3f_1, \dots, nf_1$ ）が等間隔で立ち並んだ高調波コムがTHz領域に生成される。このTHz領域に展開された周波数コムである「THzコム」は、広い周波数選択性・非常に高いスペクトル純度・直接的絶対周波数較正・周波数通倍機能・単純性といった特徴を有している。したがって、このTHzコムを高度に安定化して「THz領域で正確に値付けされた電磁波周波数の物差し」が実現できれば、これを「THz分光計測の目盛り」として利用することにより、極めて高いスペクトル精度とスペクトル分解能を有する超精密THz分光が可能になる。

### 3. THzコムの発生

光コムでは、あるオフセット周波数成分を中心として周波数コムが展開されているので（= $v_m \pm nf_1$ ）、光コムを安定化するためにはコムのオフセット周波数（= $v_m$ ）と間隔

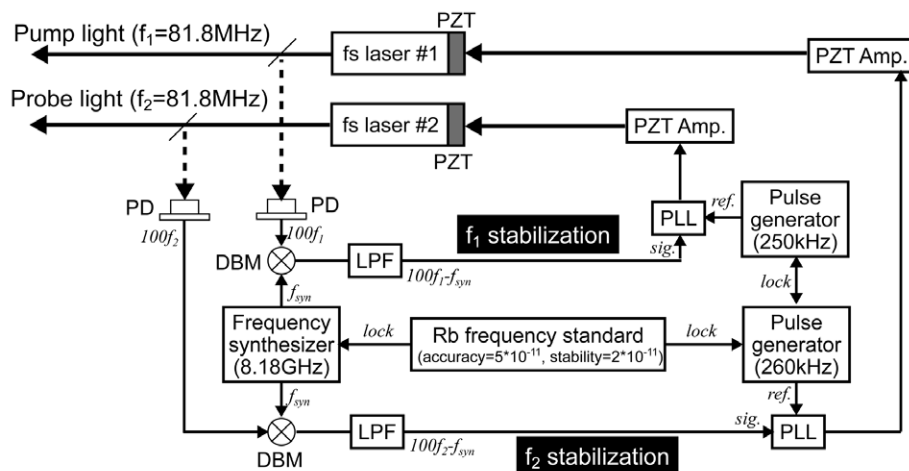


Fig. 2 Control system of mode-locked frequency in two femtosecond lasers. PZT: piezoelectric transducer, PD: photodiode, DBM: double-balanced mixer, LPF: low-pass filter, PLL: phase-locked loop.

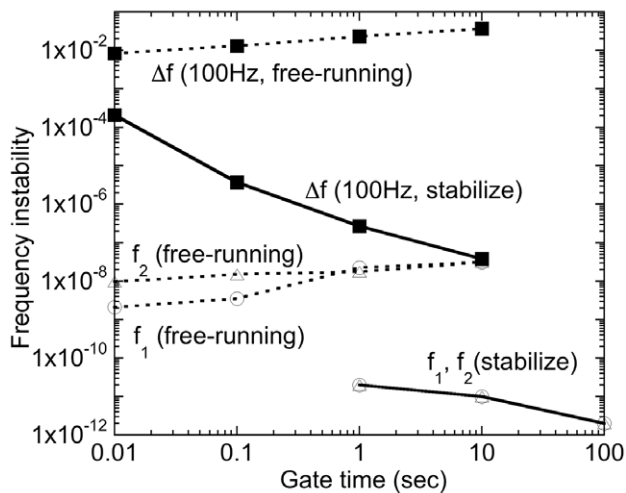


Fig. 3 Stability of mode-locked frequency and frequency difference of two femtosecond lasers.

( $f_1$ )を同時に制御する必要があった。一方、THzコムはオフセット周波数のない高調波コムであるので( $=nf_1$ )、コム間隔( $f_1$ )を一定に保つだけで安定なTHzコムが実現できる。そこで、THzコム発生用フェムト秒チタン・サファイアレーザー(ポンプレーザー: FEMTOLASERS Produktions GmbH Femtosource sPRO)のモード同期周波数を安定化制御するシステムを開発した(Fig. 2)。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(freq. = 8.18 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250 kHz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(freq. = 250 kHz)として用いたPLL(Phase-Locked-Loop)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。Fig. 3は、フリーランニング状態と安定化制御状態におけるモード同期周波数( $f_1$ )の安定度を示している。安定化制御を行うことにより周波数安定度が大幅に向上し、ルビジウム周波数標準と同程度の安定性が実現されている。このようなモード同期周波数安定化ポンプレーザーをTHz発生用光伝導アンテナに入射する

ことにより、ルビジウム周波数標準と同等の精度及び安定度を有するTHzコムが発生できる。

#### 4. THzコムの検出

光伝導アンテナを用いてTHzコムを検出する場合、光伝導アンテナ以降の検出エレクトロニクス(周波数帯域限界により、THzコム全帯域のスペクトル(1 THz以上)を直接実時間で取得するのは不可能である。そこで、THzコムを汎用電子計測機器(例えば、スペクトラム・アナライザー)で直接計測できる電波周波数(RF)帯まで正確に周波数ダウンスケーリング可能な多周波ヘテロダイン光伝導検出法を開発した。この多周波ヘテロダイン光伝導検出を行うためには、THzコム発生用ポンプレーザーとは別にTHzコム検出用プローブレーザー(AVSETA PROJECT Ltd. 社TiFKit50)を準備し、そ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がある値で一定となるようにレーザー制御を行う必要がある。そこで、ポンプレーザーと同様な制御システムを用いてプローブレーザーのモード同期周波数( $f_2$ )を安定化制御した(Fig. 2)。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ることにより、両レーザーのモード同期周波数( $f_1, f_2$ )と差周波( $\Delta f = f_1 - f_2$ )の同時高安定化を行う。その結果、プローブレーザーのモード同期周波数がルビジウム周波数標準にロックされる一方で、差周波 $\Delta f$ の変動も $10^{-7}$ オーダー(ゲート時間1秒)まで安定化された(Fig. 3)。

多周波ヘテロダイン光伝導検出法の装置図及び測定原理をFig. 4及びFig. 5に示す。上述のポンプレーザー及びプローブレーザーの安定化制御により、光周波数領域ではコム間隔が異なる2つの光周波数コムが生成されることになる。ポンプレーザー光をTHzコム発生用光伝導アンテナに入射すると、THzコム(周波数間隔= $f_1$ )が放射される。一方、プローブレーザー光をTHzコム検出用光伝導アンテナに入射すると、光伝導膜中にフォトキャリアの周波数コム(PCコム, 周波数間隔= $f_2$ )が生成される。このPC

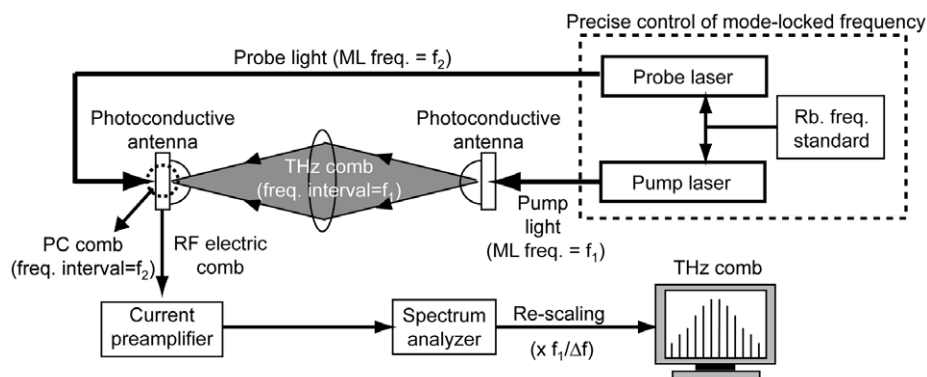


Fig. 4 Experimental setup of THz comb spectroscopy.

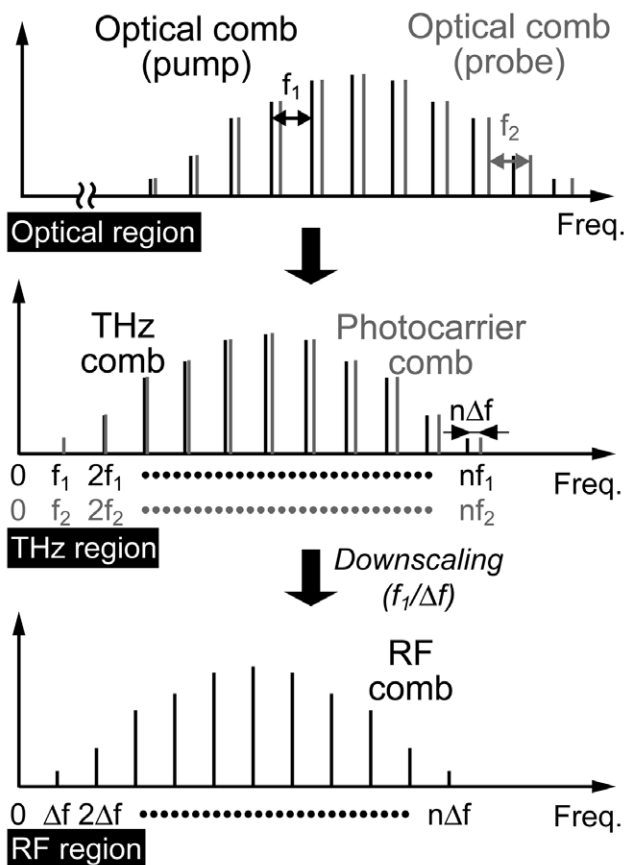


Fig. 5 Principle of multifrequency-heterodyning photoconductive detection.

コムもまたTHzコムと同じ周波数帯域を持つ高調波コムであるので、このようなPCコムが誘起された光伝導アンテナにTHzコムが入射されると、両者の相互作用(多周波ヘテロダイナ光伝導検出)により、両コムのビート周波数(=  $\Delta f = f_1 - f_2$ )をコム間隔とする2次の周波数コムがRF領域に微弱電流信号として発生する。ここで、ゼロ付近の周波数成分( $\Delta f, 2\Delta f, 3\Delta f, \dots, n\Delta f$ )のみを抽出すると、THzコムと同様な高調波コムが観測される(RFコム)。このRFコムの周波数スケールは、THzコムの周波数スケールをある周波数縮小比率(=  $f_1/\Delta f$ )でダウンスケールしたものである。このRFコムを電流-電圧変換後にスペクトラム・アナライザーで直接観測し、周波数軸を周波数縮小比率でリスケールすることにより、THzコムの正確な再現が可能になる。このようにして再現されたTHzコムの精度はコム間隔(モード同期周波数)及び周波数縮小比率の両安定性によって決定される。一方、スペクトル分解能はコム間隔であるモード同期周波数(=  $f_1$ )となる。

これまでの研究成果の一例を以下に示す。ポンプレーザー及びプローブレーザーから出力される超短パルス光は、分散補償を行っていないため、光伝導アンテナ入射時のパルス幅はいずれも100 fs程度である。両レーザーのモード同期周波数( $f_1, f_2$ )は81.8 MHz、モード同期周波数差( $\Delta f$ )は100 Hzを保つように制御されている(Fig. 2)。また、THz発生及びTHz検出にはボウタイ型光伝導アンテナを各々使い、さらにゲイン $4 \times 10^6$  V/A(帯域1 MHz)の電流電圧変換アンプを用いた。Fig. 6(a)は、スペクトラム・ア

ナライザーで測定されたRFコムであり、グラフの上側水平座標はスペクトラム・アナライザーのスケール(RFスケール)を示している。1 MHz以下の周波数帯域にRFコムが存在しているのを確認できるが、これを周波数縮小比率(=  $\Delta f/f_1 = 818,346.30$ )でリスケールされたTHzスケールを下側水平座標に示す。狭帯域なボウタイ型光伝導アンテナをTHz発生及び検出に利用しているため、スペクトル帯域がサブTHz領域に制限されているものの、THzコム・スペクトルが確認できる。比較のため、従来のTHz-TDSで得られたTHz振幅スペクトルをFig. 6(b)に示す。両者の比較から本手法によってTHz振幅スペクトルが正確に取得できているのが確認できる。また、Fig. 6(a)のTHzコム・スペクトルにおいて内部が塗りつぶされているのは、この中に3000本以上のTHzコム・モードが密集しているからである。そこで、0.0462~0.0468 THzの領域を周波数的に拡大したものがFig. 6(c)である。モード同期周波数(81.8 MHz)で等間隔に並んだ7本のTHzコム・モードが確認できる。ここで、各コム・モードの絶対周波数の精度は、周波数縮小比率の安定性から $2.5 \times 10^{-7}$ である。すなわち、これらの各コム・モードは、精度 $2.5 \times 10^{-7}$ 及び分解能81.8 MHzという性能を有する「分光計測の目盛り」として利用できる。Table 1に、THzコム分光法とTHz-TDS(従来法)の特性比較を示す。本手法によってスペクトル精度及び分解能が大幅に向上している一方で、測定時間も短縮されているのが確認できる。これはTHzコム分光法が周波数領域分光法であり、機械式時間遅延走査とフーリエ変換に基づいたフーリエ変換型分光法の制限を本質的に解消しているためである。次に、THzコム・スペクトルのさらなる広帯域化のため、実験装置の一部を修正した。まず、THz検出用光伝導アンテナには広帯域なダイポール型を用い、電流電圧変換アンプは狭帯域・高ゲインなタイプ( $5 \times 10^7$  V/A、帯域100 kHz)に変更した。広帯域化されたTHzコム・スペクトル(RFコム・スペクトル)が電流電圧変換アンプの帯域内に収まるように、モード同期周波数差( $\Delta f$ )を100 Hzから5 Hzに変更し、周波数縮小比率( $\Delta f/f_1$ )を16,366,926まで拡大した。その結果得られたTHzコム・スペクトルがFig. 6(d)であり、1 THz以上のスペクトル帯域が得られていることが確認できる。今後、THz発生素子の広帯域化(ダイポール型光伝導アンテナや非線形光学結晶の利用)、両レーザー間のタイミングジッターの抑制、ポンプレーザー光及びプローブレーザー光の分散補償などを行えば、数THz以上のスペクトル帯域の実現が可能であると考えられる。

## 5. 将来展望

THzコムを用いた分光計測及び応用計測はまだ緒に付いたばかりであるが、ここでは筆者自身の希望も込めて将来展望について簡単に述べる。

超精密THz分光という観点からは、ガス分析への応用が興味深い。近年の地球温暖化・オゾン層破壊・大気汚染など様々な環境問題において、そのメカニズムを解明する手段として大気ガスモニタリングが重要視されてい

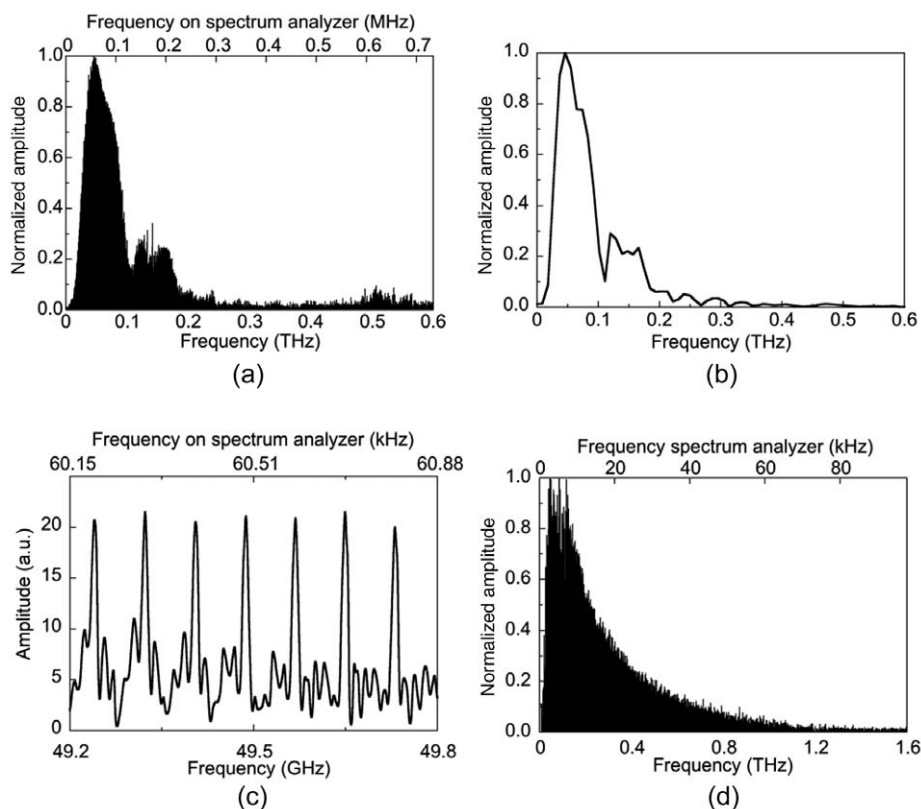


Fig. 6 Amplitude spectra of sub-THz radiation measured by (a) THz comb spectroscopy and (b) conventional THz-TDS, (c) amplitude spectrum of seven comb modes, and (d) amplitude spectrum of THz radiation measured by THz comb spectroscopy.

る．大気中に存在し構成原子数の少ないガス分子はTHz領域において回転遷移による特徴的な線スペクトルを示すことが知られており，酸素・水蒸気・オゾン・一酸化炭素・水素関連分子・窒素関連分子・塩素関連分子・硫黄関連分子などの吸収線がTHz領域にひしめきあうように存在している<sup>7)</sup>．これらの多種多様な分子種を厳密かつ同時に識別する手段として，極めて高いスペクトル確度とスペクトル分解能を有するTHzコム分光法が有用であると考えられる．

一方，近年のいわゆるTHzテクノロジーのブームは，光周波数コム同様，モード同期チタン・サファイアレーザーが牽引してきたが，レーザー装置自体が大型・複雑である上に高価であるため産業応用に対して必ずしも理想的とは言えなかった．最近，より実用的な光源として

モード同期ファイバレーザーを用いたTHz研究も進められている．THzコム分光法も，ファイバレーザーを光源として用いることにより，極めて実用的なTHz分光装置となる (Fig. 7)．すなわち，2台のモード同期周波数安定化ファイバレーザーの出力を光ファイバで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．

THz分光以外の応用計測への展開も考えられる．THzコムを構成する各コム・モードは周波数のみならず強度・位相までも安定な高品質コヒーレント・ビームであるの

Table 1 Comparison of basic performance between THz comb spectroscopy and THz-TDS.

	THz comb spectroscopy	THz-TDS
Time delay	Unnecessary	Mechanical stage
FFT	Unnecessary	Computer
Measurement time	10 sec	5 min
Spectral resolution	81.8 MHz	9 GHz
Spectral accuracy	$2.5 \times 10^{-7}$	$10^{-3}$
Amplitude spectrum	Possible	Possible
Phase spectrum	Possible (if phase meter is used)	Possible

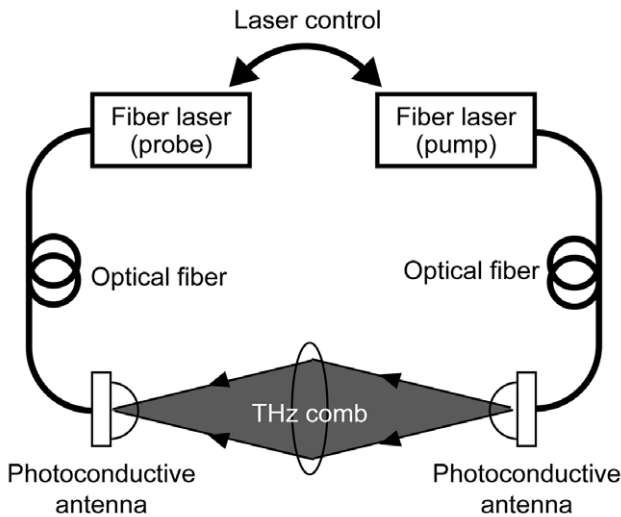


Fig. 7 Experimental setup of fiber-based THz comb spectroscopy.

で、THz領域の電磁波周波数較正器としての利用が期待できる。さらに、このTHzコムに対して、高出力・波長可変・シングルモードなTHz光源(例えば、量子カスケードレーザー)を波長走査しながら各コム・モードに順次ロックすることにより、絶対周波数が正確に値付けされた高出力THzシンセサイザーが可能になる。これは、THz領域の周波数標準光源として、分光計測のみならず基礎科学・産業応用の各分野へ幅広い派生が期待される。

## 6. まとめ

THz領域における周波数コムを基準としたTHzコム分光法について紹介した。まず、モード同期周波数安定化ポ

ンプレーザとTHz発生用光伝導アンテナを用いることにより、ルビジウム周波数標準と同程度の確度と安定度を有するTHzコムを発生させた。さらに、THzコムを読み出すために、モード同期周波数安定化プローブレーザーとTHz検出用光伝導アンテナによる多周波ヘテロダイン光伝導検出法を開発した。その結果、THzコムがRF帯まで正確にダウン・コンバートされ、汎用電子計測機器での計測が可能となった。得られたTHzコムの確度は $2.5 \times 10^{-7}$ 、分解能は81.8 MHzであった。最後に、THzコムを用いた分光計測及び応用計測に関して、将来展望を概観した。今回紹介したTHzコムが、THzテクノロジーと周波数コムを融合した新しい領域への展開を誘起する一因になることを願う。

本研究は、総務省・戦略的情報通信研究開発推進制度(SCOPE)及び科学研究費補助金(課題番号18686008, 18650121)より援助を受けた。

## 参考文献

- 1) M. Tonouchi: Nature Photonics 1(2007)97.
- 2) T. Löffler, T. Bauer, K. Siebert, H. Roskos, A. Fitzgerald, and S. Czesch: Opt. Express 9(2001)616.
- 3) K. Kawase, Y. Ogawa, Y. Watanabe, and H. Inoue: Opt. Express 11(2003)2549.
- 4) K. Yamamoto, M. Yamaguchi, F. Miyamaru, M. Tani, M. Hangyo, T. Ikeda, A. Matushita, K. Koide, M. Tatsuno, and Y. Minami: Jpn. J. Appl. Phys. 43(2004)L414.
- 5) T. Yasui, Y. Kabetani, E. Saneyosh, S. Yokoyama, and T. Araki: Appl. Phys. Lett. 88(2006)241104-1.
- 6) Th. Udem, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch: Nature 416(2002)233.
- 7) テラヘルツテクノロジー動向調査委員会: 未来を拓くテラヘルツ技術~テラヘルツテクノロジー動向調査報告書~(テレコム先端技術研究支援センター, 2005)p. 74.

## レーザーワード

### 光伝導検出(photoconductive detection)

光伝導アンテナを利用したTHz波の検出法。光伝導アンテナは光伝導膜上(例えば、低温成長GaAs膜)に平面アンテナ形状をもつ金属電極をつけた構造となっており、アンテナの両側からTHz波とプローブ光をそれぞれ入射する。プローブ光がアンテナ間ギャップに光励起キャリアを生成するのに対して、THz波はアンテナ間にTHz電場振幅に比例した電位差を発生させる。したがって、プローブ光によって光励起キャリアが生成された状態でTHz波が

入射されると、光伝導アンテナから微弱電流信号が出力されることになる。この電流値は、時間領域においてTHz電場振幅 $E(t)$ と光励起キャリア数 $N(t-\tau)$ のコンボリューション積分で表せるので(ここで $\tau$ は時間遅延)、これをフーリエ変換した周波数領域ではTHz電場振幅 $E(\omega)$ と光励起キャリア数 $N(\omega)$ の積となる。このようにして、THzコムとPCコムの多周波ヘテロダイン光伝導検出が行われる。(安井 武史)