

テラヘルツ電磁波工学の新しい流れ

萩行正憲*

New Trend of Terahertz Technology

Key Words : Terahertz Wave, Femtosecond Laser, Spectroscopy, Imaging

1. はじめに

「テラヘルツ波」は電磁波の一種であり、通常、 $0.1 \sim 10 \text{ THz}$ (テラヘルツ = 10^{12} Hz) の周波数領域の電磁波を指す(公式な定義はない、図1参照)。赤外やラマン分光などでよく使われる cm^{-1} (カイザー) というエネルギー単位でいうと $3 \sim 300 \text{ cm}^{-1}$ 、 eV 単位では $0.4 \sim 40 \text{ meV}$ 程度である。波長では、 $0.3 \text{ mm} \sim 30 \mu\text{m}$ に対応する。筆者は、1981年に大阪大学工学部応用物理学科三石教授の研究室の助手に採用され、1980年代半ばから1990年代前半にかけて、後進波管(BWO)を光源とするミリ波(波長 $10 \sim 1 \text{ mm}$)・サブミリ波(波長 $1 \sim 0.1 \text{ mm}$)分光器の開発に携わった¹⁾。この時の印象としては、 $75 \sim 170 \text{ GHz}$ の測定を行なうのに高価な電子管を2本も使い、かつ、もっと高い周波数を得ようと思うと、ちょっとした静電気で壊れてしまうのに $2 \sim 300$ 万円もする通倍器が必要ということで、ミリ波・サブミリ波分光とはなんとお金がかかるものなのかということであった。しかも、固体の中赤外やラマンスペクトルはシャープなスペクトル線が何本も現れて、見栄えがするのに対し、当時主に測定していた $75 \sim 170 \text{ GHz}$ では、絶縁体やドーパされた半導体のスペクトルはだらだらとしたブロードなものでなんとも味気ないものであった。ところが、1980年代半ばから、超短パルスレーザーを光伝導アンテナに照射し、テラヘルツ波を放射させる技術が開発され²⁾、1990年頃から分光

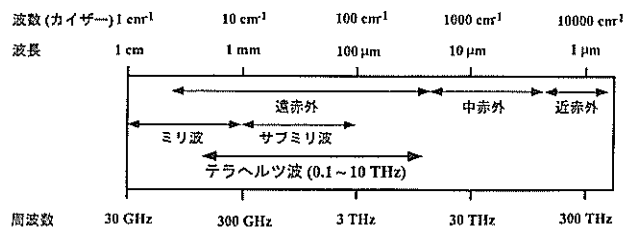


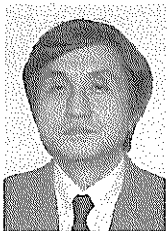
図1 「テラヘルツ波」と従来の電磁波帯の名称の関係

に応用されるようになってきた³⁾。この手法は電子管を使うのに比べて極めて簡便で、しかも、 50 GHz から 3 THz までを10分程度で測定してしまうもので、当時、 $75 \sim 170 \text{ GHz}$ を半日かけて測定していた筆者にとっては、まさに革命的な手法に感じられた。

筆者らは、その後、この新しい手法を用いたテラヘルツ波工学の開拓に携わり、1995年には世界で初めて、高温超伝導薄膜デバイスに超短光パルス照射してテラヘルツ波を放射することに成功した⁴⁾。このあたりのことについては、本誌を含め既にいくつかの解説に書いているので参照されたい⁵⁻⁷⁾。テラヘルツ波は、従来の遠赤外線とほぼ一致し、従来はマイクロ波と光の間であって未開拓電磁波と呼ばれていたが、最近世界的に研究が進展しており、国家的なプロジェクトも進み始めている。この解説では、超短パルスレーザーを用いたテラヘルツ波の放射とその分光・イメージング応用について、我々の成果を中心に紹介する。

2. 超短パルスレーザー励起による テラヘルツ波の放射

超短パルスレーザー励起によるテラヘルツ波放射の原理はいたって簡単である⁷⁾。半導体などにエネルギーギャップより高いエネルギーの超短光パルス(時間幅100フェムト秒以下、 $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$)を照射すると、キャリアが生成されるが、もしこのキャリア



* Masanori HANGYO
1953年2月生
京都大学大学院理学研究科物理学第一
専攻博士課程修了
現在、大阪大学超伝導フォトンクス研
究センター、教授、理学博士、光物性・
テラヘルツ波工学
TEL 06-6879-7980
FAX 06-6879-7984
E-Mail hamsyo@rcsuper.osaka-u.
ac.jp

が外部あるいは内部電場により加速されると、過渡的電流 $J(t)$ が流れる。古典電磁気学によると、この電流を源として電磁波が放射され、その遠方界での電場振幅 $E(t)$ は dJ/dt に比例する。過渡的な電流が急峻な変化をするほど放射されるパルス電場 $E(t)$ も急峻になり、フーリエ成分としては高周波を含むようになる。過渡的電流が1ピコ秒程度の応答時間を有するならば、その逆数の周波数帯の電磁波、即ち、テラヘルツ波が放射されるということになる。図2に、放射素子として光伝導アンテナを用いた場合のテラヘルツ波放射・検出システムを示す。基板上の半導体薄膜(低温成長ガリウム砒素薄膜がよく用いられる)に、 $5\mu\text{m}$ 程度の間隔のギャップを持つコプレーナー型の電極を設け、電圧をかけておく。ここに、フェムト秒レーザー(モード同期チタンサファイアレーザーがよく用いられる)を照射すると、過渡的なキャリアが生成され、電極にかけられた電場により加速される。この過渡的電流を源として自由空間に放射されたテラヘルツ波パルスは、放物面鏡で検出素子に絞り込まれる。検出素子は、放射素子と同じであるが、電圧をかける代わりに電流計に繋がっている。励起パルスを半透鏡で分けて、時間遅延をかけて検出素子の電極ギャップに照射すると過渡的なキャリアが生成され、それが、テラヘルツ波により加速されて電流として取り出される。電流はテラヘルツ波の振幅に比例するので、遅延時間を走査すればテラヘルツ波の時間波形が得られることになる。従来は、ポロメーターなどの液体ヘリウム冷却の検出器でパワーしか測定できなかったのが、室温でしかも電磁波の波形そのものが測定できるのがこの検出法の特長である。図2に示されるように、テ

ラヘルツ波の伝播経路に被測定試料を置けば分光が可能である。試料があるときとないときで波形を測定し、フーリエ変換によりスペクトル情報を得るこの分光法をテラヘルツ時間領域分光法(Terahertz Time Domain Spectroscopy, THz-TDS)と呼んでいる^{8,9)}。ここでは述べないが、我々はテラヘルツ波の励起に、高価なフェムト秒レーザーに替えて、安価なCWマルチモードレーザーダイオードを用いる方法を開発し、「貧乏人のテラヘルツ分光装置」と呼んでいる¹⁰⁾。

光伝導アンテナは優れた放射素子ではあるが、リソグラフィなどの素子作製技術が必要であり、また、強い光を当てると破壊されたり劣化したりするという扱いにくさがある。しかし、素子加工しない半導体表面からもテラヘルツ波が放射される現象が米国のZhangらによって報告され¹¹⁾、また、放射強度が外部磁場により強くなることも見出された。半導体表面からテラヘルツ波が放射されるのは、半導体表面には表面準位に起因するビルトインの電場が存在しているからで、この電場によって光生成キャリアが加速されるためである。さらに、分子研の猿倉らにより、InAsは有効質量が小さいため放射効率が高くまた磁場による増強も強いことが報告され¹²⁾、実用光源として磁場を印加したInAsが手軽なテラヘルツ放射源として使えることがわかってきた。様々な研究により、半導体からの放射の機構については、1. 過渡的電流効果、及び、2. 非線形光学効果の2種類があることがわかり、また、前者については、先に述べたビルトインの表面電場下での過渡電流による放射機構の他、電子と正孔の拡散係数の違いによる表面での拡散電流の効果、即ち、フォトデンバー効果が放射の機構になるケースもあることもわかってきた。しかし、半導体表面からの放射は現象的に複雑で、例えば、半絶縁性インジウムリン(SI-InP)では、温度を室温から下げていくと140K付近で波形の正負が逆転する現象も見出され、ビルトイン電場の効果とフォトデンバー効果の寄与が温度によって入れ替わることで説明されている¹³⁾。また、半絶縁性ガリウム砒素(SI-GaAs)では、室温から500Kに温度を上げると強度が30倍にもなる現象が見出されている¹⁴⁾。この現象の詳細な解明はまだであるが、半導体表面における光生成キャリアの超光速ダイナミクスと関連していると考えられ、半導体の超光速

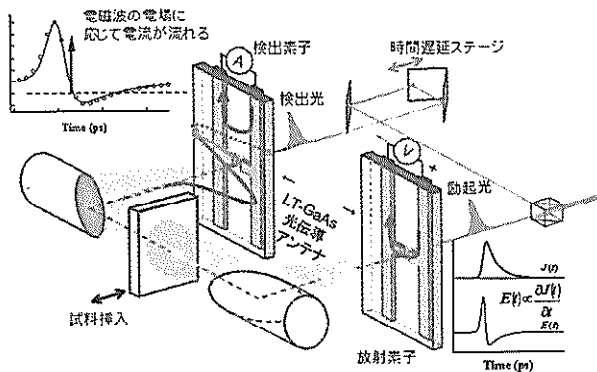


図2 光伝導アンテナによるテラヘルツ波の放射と検出の模式図

光物性として物理的にも興味深い現象である。

近年、半導体や超伝導体など様々な物質からのテラヘルツ波放射が報告されている。光伝導アンテナを用いた場合には、4THz程度が高周波の限界であるが、非線形光学効果(差周波混合, 光整流効果)を利用した場合には、10フェムト秒レーザーを照射すると100THzつまり中赤外域までの電磁波放射が得られる。強度増大に関しては、2~3テスラの磁場を印加することにより、InAsからの放射では平均出力100 μ Wというこの周波数帯としては強い放射が得られている。磁場印加による放射強度の増大機構の研究が進み、強度増大が磁場によって放射双極子の向きが回転して半導体内部で発生したテラヘルツ波が外部に取り出され易くなったためであることが明らかになってきている。最近、このことを利用すると、外部磁場を印加しないでも、InAs表面に屈折率マッチング用のMgOレンズを接着するだけで2桁の強度増大が得られることがわかった。

3. 分光応用

分光はテラヘルツ波の重要な応用分野である。分光というと地味な印象があって、プロジェクトの申請などでもタイトルには正面切ってつけないキーワードになってしまったが、長い間未開拓電磁波としてまっとうな応用など考えられなかったテラヘルツ波の応用は、まず、分光から始まると筆者は考えている。物質のどんな情報が得られるかを紹介する

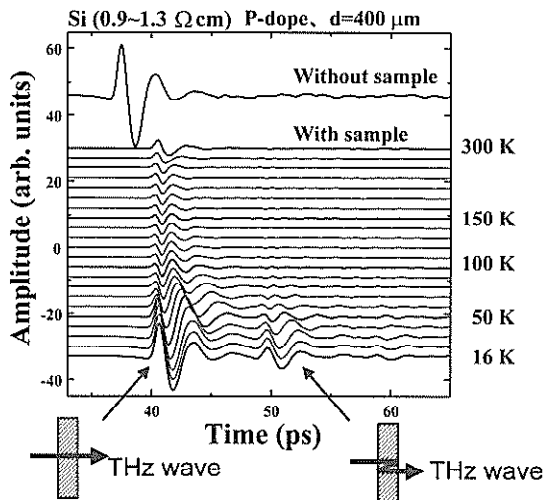


図3 ドープされたシリコンに対するテラヘルツ波の透過波形の温度変化

ために、まず、ドープされたシリコンの透過スペクトルの測定結果を紹介する¹⁵⁾。

図3は、図2のTHz-TDS装置を用いて測定した透過テラヘルツ波の時間波形の温度変化である。試料がない時の波形は、1サイクル程度のパルスであるが、試料の挿入により時間遅れが生じ振幅も小さくなる。温度の低下とともに振幅は一旦小さくなった後、100K以下でどんどん大きくなる。これは100K以下でテラヘルツ波に対する透過率が高くなることを意味し、このため時間波形に多重反射によるピークが見えてくる。この時間波形をフーリエ変換し、試料のあるときとないときで比較すると透過率 T と位相シフト ϕ という量が各周波数で得られる。半導体においては T と ϕ は、周波数 ν の関数としての試料の複素電気伝導度 $\sigma(\nu) = \sigma_1(\nu) - i\sigma_2(\nu)$ で決まる。逆に、測定された $T(\nu)$ と $\phi(\nu)$ から、 $\sigma_1(\nu)$ と $\sigma_2(\nu)$ を導出することができる。その結果を図4に示す。温度とともに電気伝導度が大きく変化しているのがわかる。特に実部を見ると、室温から温度を下げると一旦伝導度が上昇し、さらに温度を下げると伝導度が急激に減少しているのがわかる。これは、次に見るように、温度の低下とともにフォノン散乱の減少により移動度が上昇するが、さらに温度を下

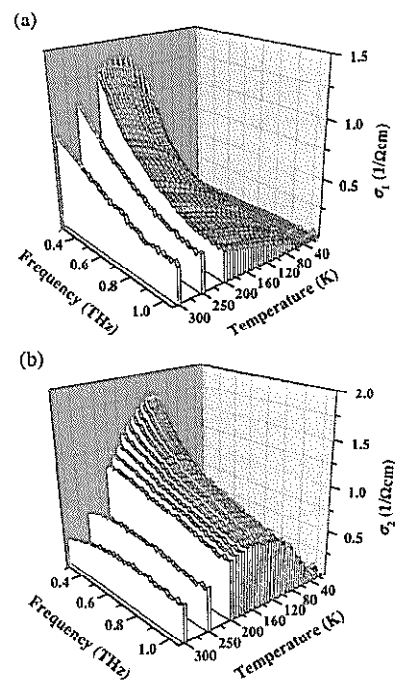


図4 図3の波形から導出された複素電気伝導度の(a)実部 σ_1 と(b)虚部 σ_2

げるとキャリアの凍結が始まるために伝導度が低下するのが原因である。

半導体の複素電気伝導度は、自由電子モデルを基本としたドルーデモデルで記述できる。パラメータは、キャリア密度と移動度である。各温度での複素電気伝導度をこの2つの量をパラメータとしてフィッティングし、求めたキャリア密度と移動度を温度の関数としてプロットしたのが図5である。キャリア密度の温度変化は、フェルミ分布に基づいて計算した曲線に一致し、また、移動度はこれまでに実験で得られているホール移動度にはほぼ一致している。通常、キャリア密度と移動度を求めるためには、試料に電極をつけ磁場下での測定を行なうが、この手法では非接触かつ磁場なしでこれらの量を求めることができるのである。テラヘルツビームは2~3mmに集光できるので、ある程度の局所的な測定も可能である。

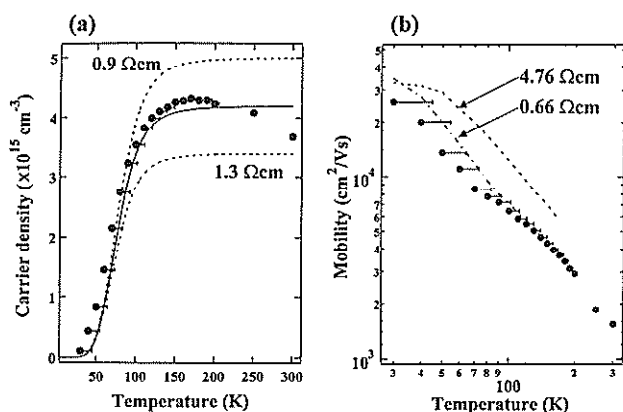


図5 ドルーデモデルによるフィッティングから求められた(a)キャリア密度と(b)移動度(黒丸がテラヘルツ測定によるもの、(a)の実線と破線はフェルミ分布から求めた理論曲線、(b)の破線と一点鎖線はホール移動度)

以上が基本的な測定であるが、我々はこれまでに、不透明な試料用に反射型システムを開発している¹⁶⁾。反射型は、試料と参照用金属鏡を交互に測るため、位相を精度良く導出するために少し工夫が必要となる。また、参照用の測定が不要な手法として、sとp偏光の反射測定を行なう「テラヘルツ・エリプソメリー」を提案している¹⁷⁾。THz-TDSでは時間波形が測定できるため、波形を見ることによって直感的に物理現象を把握するのに有効な場合がある。例えば、ファ

ラーデ効果である。ファラデー効果は、物質に外部磁場を光(電磁波)ビームに平行に印加することにより、偏光が回転したり、直線偏光が楕円偏光になったりする現象である。図6は、ドーパされたシリコンにおける磁場1.5テスラ下でのファラデー効果を示したもので、磁場を印加することによりy方向に直線偏光したテラヘルツ波パルスが、自由キャリアによるファラデー効果により偏光が回転し、楕円偏光になっていく様子が明らかに見て取れる¹⁸⁾。回転方向は、磁場を反転すると反対になる。少し複雑であるが、この波形をフーリエ変換することにより、偏光主軸の回転角と楕円率を周波数の関数として求めることができる。これらの量の周波数依存性は、やはり、キャリア密度と移動度に大きく依存するため、ファラデー効果はこれらの物性量の測定に利用することができる。

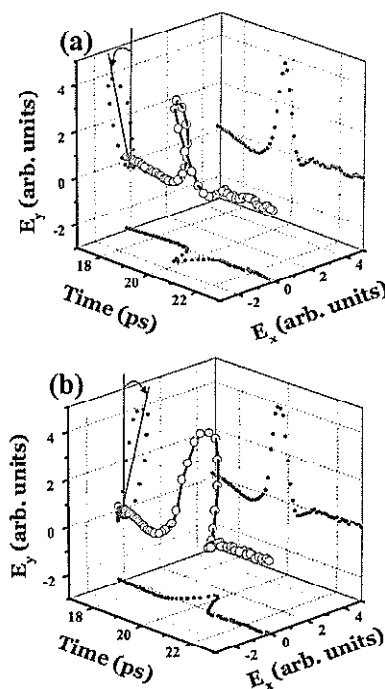


図6 ドープされたシリコンによるファラデー効果((a)と(b)では磁場方向が逆)

「はじめに」のところで、テラヘルツ帯の固体のスペクトルはブロードで味気ないと述べたが、これは必ずしも真実ではない。最近、アミノ酸や薬物のテラヘルツ帯のスペクトルが測定されはじめ、以外にシャープな構造を有することがわかってきた。このこと自体は、従来の遠赤外フーリエ分光(FIR-FTS)

である程度わかっていたことであるが、FIR-FTSでは、液体ヘリウム冷却の検出器の準備が面倒であり、また、高圧水銀灯を光源としているためテラヘルツ帯の強度が弱く、また十分に絞れなかった。ところが、THz-TDSでは、検出器は室温であるので、前準備が要らず、光源はほぼ点光源と考えていいので回折限界まで絞り込むのは容易である。このような使い易さと、昨今のバイオブームにより、従来測定例が少なかったバイオ関連試料のデータベース構築がなされつつある。図7にビタミンB₂粉末の吸収スペクトルと屈折率を示す。分子間振動に起因する低エネルギーの振動モードがいくつか見られるが、比較的シャープな線であることから分子の指紋としても利用できる可能性がある。我々は、現在、様々なアミノ酸、タンパク質などの測定を行っており、従来の赤外分光やラマン分光と並ぶバイオ関連物質の測定手法として育てたいと考えている。

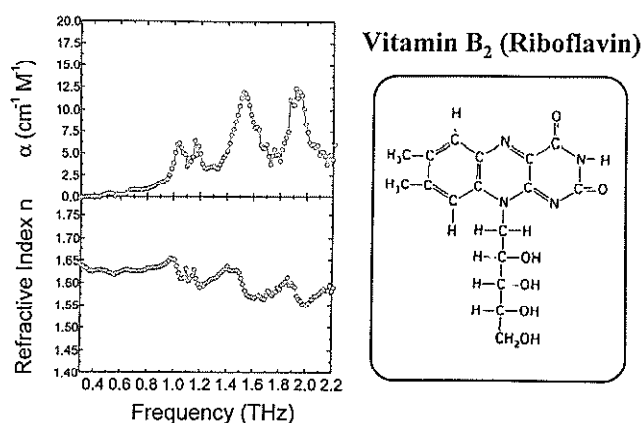


図7 ビタミンB₂のテラヘルツスペクトル

テラヘルツ分光の最後として、フォトニック結晶の例を紹介する。フォトニック結晶は、誘電体や金属に波長オーダーの周期的な構造を作製した人工構造物で、電子が結晶中でバンドを作るように、光のバンドが形成され、構造によっては光が伝播できないエネルギー帯、つまり、フォトニックバンドギャップが形成されることから、新しい光学素子として興味を持たれている。フォトニック結晶を可視領域で作製するのは大変困難であるが、テラヘルツ域ではミリからサブミリオーダーの加工であるので比較的自由に構造が作れる。最も基本的な例として、直径3.175mmの誘電体球(Si₃N₄球、屈折率~3)を二次元三角配列した系の透過スペクトルを図8に示す¹⁹⁾。

球内に閉じ込められた電磁波が球間をホッピングすることによるフォトニックバンドの影響で透過スペクトルは非常に複雑であるが、厳密な計算により得られたスペクトルとの一致は極めて良い。ここには示していないが、位相シフトスペクトルの実験と理論の一致も良い。図8に示したスペクトルは、これまで報告されているフォトニック結晶のスペクトルの中で、実験と理論が最も一致した例である。テラヘルツ帯でのフォトニック結晶の研究の意義としては、試料の作製が比較的簡単であるため、大胆な構造の試料を作製でき、しかも、THz-TDSで透過時間波形を見ることによって、物理的な描像をより明確に捕らえることができる点にある。最近、時間波形を見ることにより、二次元三角円孔配列金属フォトニック結晶で偏光が回転する新しい現象を見出している²⁰⁾。

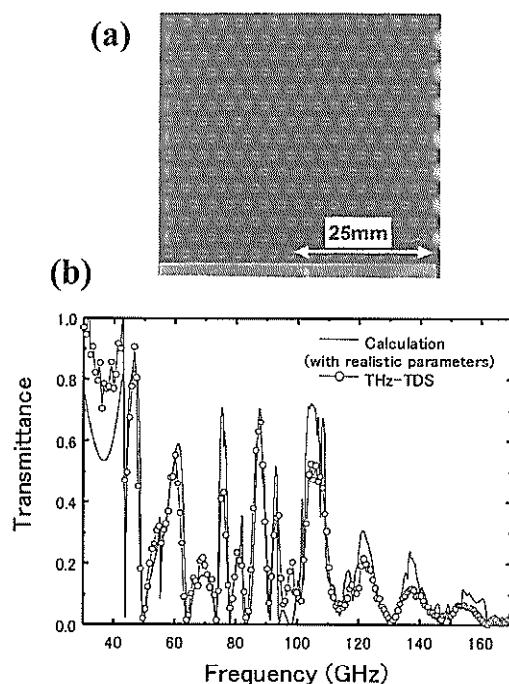


図8 二次元Si₃N₄球三角配列フォトニック結晶の (a)写真と(b)透過スペクトル

4. テラヘルツイメージング

最後に、テラヘルツ波によるイメージングについて簡単に紹介する。テラヘルツ波は、セラミックスやプラスチックなどを透過するため、新しいイメージング用ビームとして期待されている。しかし、ウェブなどでの記事で、X線のように人体を透過するなど

という誤解をされている方も多いうように見受けられる。テラヘルツ波が基本的に苦手(吸収あるいは反射されてしまう)なのは、水と金属である。人体のように水を多く含むものは通らないし、金属の箱に入ったものは見えないのである。テラヘルツイメージングの一番プリミティブなシステムは、放物面鏡やレンズなどでテラヘルツビームをミリサイズに絞り、そこに試料を置いてビームに垂直な方向に2次元的に移動することにより逐次透過を測定してイメージを得るものである。

図9に最も基本的な例として、直径 $30\mu\text{m}$ から 1mm の金属ワイヤーを並べて、1次元的に走査した場合の振幅の変化を示す。入射テラヘルツ波の偏光がワイヤーと同じ場合には、直径 $30\mu\text{m}$ でも十分に見えているが、偏光がワイヤーと垂直な場合には、 $100\mu\text{m}$ 程度で漸く見えていくことがわかる。テラヘルツ波は、小麦粉やチョコレートなどの食品を透過するので、異物検査に適用できる可能性がある。ただ、現状では時間がかかるので実用的ではないが...

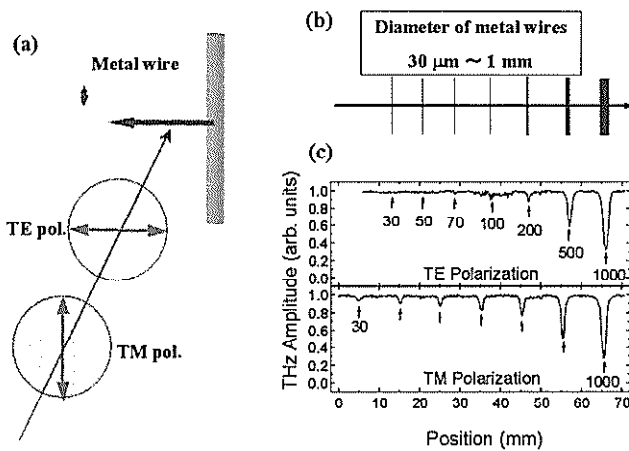


図9 金属ワイヤーのテラヘルツ波透過振幅

図10に磁気カードのイメージングを示す。この測定は、カードの各位置で時間波形を測定し、フーリエ変換により周波数ごとの画像を得たもので、図ではそのうちの 350GHz と 1.25THz の画像を示している。画像のコントラストは周波数によって随分異なることがわかる。エッジの部分では回折の効果、また、磁性体が塗ってある部分では吸収係数の周波数依存性がこのようなコントラストを与えているものと考えられる。

このようなイメージングは近年生体を含むいろい

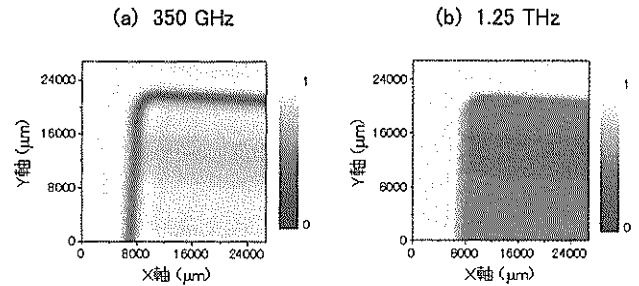
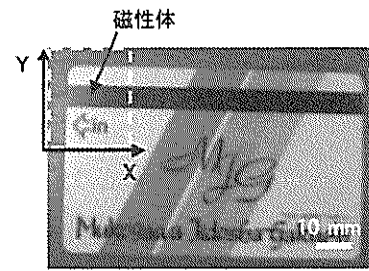


図10 磁気カードのテラヘルツイメージ

ろな対象物で行なわれるようになりつつある。また、テラヘルツ波によるイメージングの空間解像は回折限界からサブミリ程度であるが、近接場の利用により $100\mu\text{m}$ 以下の分解も得られるようになっている。

5. ま と め

最近のレーザー励起テラヘルツ波の発生と応用について簡単に紹介した。ここで述べた超短パルスレーザー励起による広帯域の放射の他に、東北大学の伊藤弘昌教授や理研の川瀬晃道博士を中心とする非線形光学効果を用いた単色テラヘルツ波の発生法も実用段階に達している²¹⁾。また、IBMのグループにより開発された量子カスケードレーザーも従来の中赤外領域から、最近ではテラヘルツ領域に達しており、今後の発展が大いに期待されている²²⁾。

世界的には、テラヘルツ波のバイオ応用を中心とするEUのTeravisionやTHz-Bridgeなどの大型プロジェクトが進みつつある。我が国でも、筆者を領域代表者とする文科省の科研費特定領域(B)「レーザー・テラヘルツ波工学の開拓」(H11-14年度)をはじめ、いくつかのプロジェクトが行なわれ、あるいは、行なわれつつあり、本年度からはバイオ・医学応用をターゲットとする5年間の文科省のリーディングプロジェクト「新産業基盤未踏光学『テラヘルツ光学』開発・創生プロジェクト」が始まる。

テラヘルツ波は、ひと昔前に比べると格段に進歩したとはいえ、まだ赤子が漸く立ち上がったというところである。大きな産業に育つまでにはまだいくつかのブレークスルーが必要である。そのために、他分野の多くの方々のお知恵を拝借したいと考えている。

参 考 文 献

- 1) 萩行正憲他：固体物理, 31, 335(1996).
- 2) D.H.Auston et al. : Appl. Phys. Lett., 45, 284(1984).
- 3) M.van Exter and D. Grischkowsky : Phys. Rev. B, 41, 12140(1990).
- 4) M.Hangyo et al. : Appl. Phys. Lett., 69, 2122(1996).
- 5) 萩行正憲：生産と技術, 52(No.1), 39(2000).
- 6) 萩行正憲：O plus E, 22, 51(2000).
- 7) 萩行正憲：高温学会誌, 27, 131(2001).
- 8) 阪井清美他：レーザー研究, 30, 376(2002).
- 9) M.Hangyo et al.: Meas. Sci. Technol., 13, 1727(2002).
- 10) O.Morikawa et al. : Appl. Phys. Lett., 76, 1519(2000).
- 11) X. -C. Zhang and D. H. Auston : J. Appl. Phys., 71, 326(1992).
- 12) N.Sarukura et al. : J. Appl. Phys., 84, 654 (1998).
- 13) M.Nakajima et al.: Phys. Rev. B, 67, 195308 (2003).
- 14) M.Nakajima et al. : Appl. Phys. Lett., 81, 1462(2002).
- 15) S.Nashima et al. : J. Appl. Phys., 90, 837 (2001).
- 16) S.Nashima et al. : Appl. Phys. Lett., 79, 3923(2001).
- 17) T.Nagashima and M.Hangyo : Appl. Phys. Lett. 79, 3917(2001).
- 18) A.Quema et al.: submitted to J. Appl. Phys.
- 19) T.Kondo et al. : Phys. Rev. B, 66, 033111 (2002).
- 20) F.Miyamaru et al. : Appl. Phys. Lett., 82, 2568(2003).
- 21) K.Kawase et al. : Appl. Phys. Lett., 68, 2483(1996).
- 22) R.Kohler et al. : Nature, 417, 156(2002).

