

テラヘルツ領域シングルショット2次元超高速イメージング法の開発

Development of a single shot 2D terahertz-wave ultrafast imaging method

山口 勇輝(M1), 鈴木 敬和(D1), 根本 寛史(B4)

Yuki Yamaguchi, Takakazu Suzuki, and Hirofumi Nemoto

Abstract

We report the construction of terahertz (THz)-wave generation system and THz-TDS system for the development of a single shot 2D-ultra-fast THz-wave imaging method. A 110-nJ THz pulse ranging in 0-1.5 THz was obtained by a wave-front tilting scheme with LiNbO₃ crystal. Although 2D-imaging by THz waves was successfully demonstrated, further improvement in the SNR is necessary for single shot imaging.

1 はじめに

テラヘルツ領域は、電波と光波の中間の周波数を持つ電磁波であるが、これまで高効率の発生方法がなく、高感度の検出方法もなく、また、空気中の水蒸気によって容易に吸収されるといった問題があったため、長期にわたって研究が進んでこなかった未開の周波数領域であった。しかし、近年のフェムト秒パルスレーザーの発展によりこれらの問題が克服され、急速に発展が進んでいる。テラヘルツ波をイメージングに用いることで、電波の持つ高透過性と光の持つ高分解能を両立した撮像が可能となることや、有機物の指紋スペクトルと呼ばれる特有の吸収がテラヘルツ帯で現れるため、品質検査やセキュリティ、医療など幅広い分野でのイメージング応用が期待されている。

テラヘルツ波の検出には一般的に、光伝導アンテナや、電気光学効果を利用したEOサンプリング [1] といった手法が用いられる。EOサンプリングは、ZnTe等の電気光学結晶とバランス光検出法を使っ

て行われ、テラヘルツ波に対してプローブ光の時間遅延を走査して電界時間波形を計測する。それぞれの時間遅延で電気光学効果による複屈折性に伴うプローブ光の偏光の変化を計測することでテラヘルツ波の電界波形が得られる。この方法を使って2次元空間イメージングをするためには2次元空間軸方向と時間軸方向にプローブ光の走査が必要となり、計測時間が非常に長くなることや、撮像対象の現象を繰り返し起こす必要があるのが問題である。これを短時間化するため、バランスフォトリテクタをCCDやCMOSといった2次元撮像素子に置き換え、単一パルスで2次元空間の電界強度分布計測をする方法 [2]が考案されているが、時間波形の再生のためには時間軸方向の走査を省くことはできない。また、時間軸方向の走査を不要にするため、周波数チャープパルスを用いたプローブ光として使い、検出器として分光器を使うことで単一パルスでテラヘルツ波の電界波形を計測する方法 [3]が考案されているが、この方法を2次元空間計測に拡張するのは難しいという問題がある。

そこで、本研究室で開発した2次元超高速バーストイメージング法であるSF-STAMP [4]の技術と、チャープパルスを利用したテラヘルツ波形計測法を組み合わせ、シングルショット2次元超高速THz波イメージングを可能にする計測法を確立するのが本研究の目的である。今年度は、テラヘルツ領域シングルショット2次元超高速イメージング法開発のため、テラヘルツ波発生系の構築、THz-TDS系の構築とテラヘルツ波発生系の広帯域化のための実験系の改良を行った。

2 テラヘルツ波発生系

高強度のテラヘルツ波を発生するため、CPA からのフェムト秒パルスレーザーを使って波面傾斜法 [5]を用いたテラヘルツ波発生系を構築した。この方法では LiNbO₃ 結晶(LN 結晶)を非線形光学結晶として使い、LN 結晶の波長 805 nm での屈折率は $n_p=2.25$ 、1 THz での屈折率は $n_{THz}=4.96$ [6]である。波面傾斜法では、この大きな屈折率差のある波長変換で位相整合条件を達成するために 4f 光学系を用いてポンプパルスの波面を傾斜させ、ポンプパルスとテラヘルツ波の進行方向の違いを利用する。波面傾斜法における位相整合条件は式(1)のように表される。

$$v_p \cos \theta_{LN} = v_{THz} \quad (1)$$

ただし、 v_p 、 v_{THz} はそれぞれ LN 結晶内でのポンプパルス、テラヘルツ波の伝搬速度、 θ_{LN} はポンプパルスの進行方向とテラヘルツ波の進行方向がなす角度である。このような波面傾斜を達成するため、Fig. 1(a)のような 4f 系を設計した。

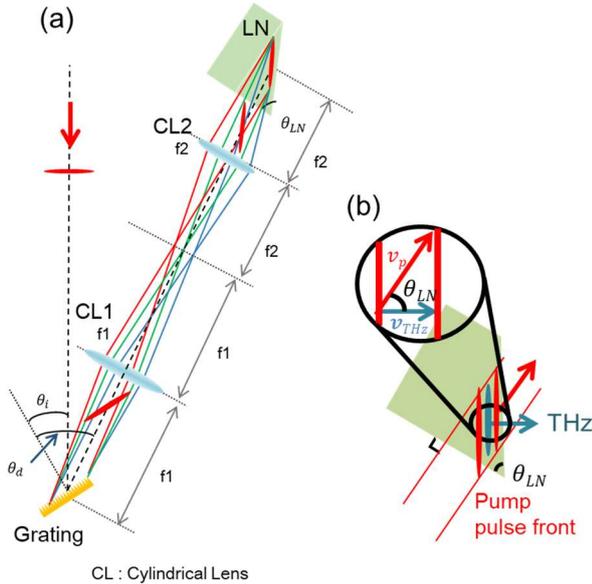


Fig. 1 (a) 4f optical system for terahertz generation (b) Propagation direction of pump pulse and terahertz wave in LN crystal

式(1)から θ_{LN} を計算すると、 $\theta_{LN} = 62.9^\circ$ となり、この θ_{LN} を達成するための 4f 系の条件式は式(2)のように表される。

$$M = \frac{\lambda p}{n_p \tan \theta_{LN} \cos \theta_d} \quad (2)$$

ただし、 M は2つのレンズによる拡大率、 λ はポンプパルス波長、 p は1 mmあたりの回折格子溝本数、 θ_d は回折角である。また、LN 結晶内に転写される回折格子の像の角度が波面の角度に一致するための条件は式(3)のように表現される。

$$\tan \theta_{LN} = n_p M \tan \theta_d \quad (3)$$

式(2)、(3)式を満たす回折角と拡大率の条件をグラフにしたものが Fig. 2 である。

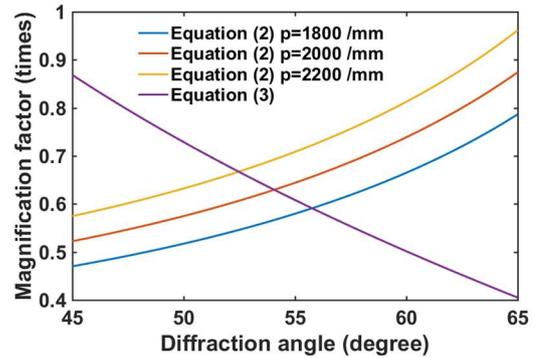


Fig. 2 Conditions of 4f system necessary to obtain the angle of the pulse front satisfying the phase matching condition

Fig. 2 より、溝本数 1800 本の回折格子を使ったとき、回折角 55.7° で拡大率 0.59 倍となるように 4f 光学系を設計することで、所望の波面の角度を得ることができることがわかる。そこで、4f 光学系のレンズの焦点距離を $f_1 = 100$ mm、 $f_2 = 60$ mm、回折格子へのポンプパルスへの入射角を 38.5° としてテラヘルツ発生系の構築を行った。

テラヘルツ波の発生の確認には焦電式パワーメータ (THZ9D-20mS-BL-D0, Gentec-EO inc.) を使い、ポンプパルスパワーに対するテラヘルツ波パワーの変化を計測した。計測結果を Fig. 3 に示す。

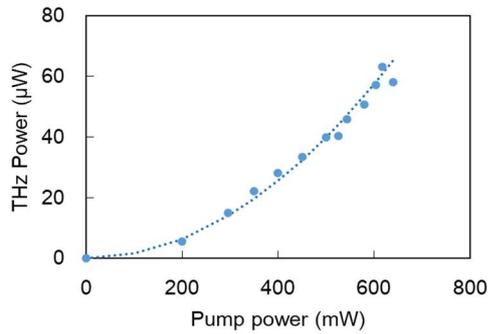


Fig. 3 Relation between pump pulse power and terahertz wave power

テラヘルツ波発生に用いている光整流過程は2次非線形光学効果であるため、テラヘルツ波はポンプパルスエネルギーに対して2次関数的に増加するはずである。Fig. 3よりテラヘルツパワーの2次関数的な増加が計測されたため、テラヘルツ波が確かに発生していることが確認された。テラヘルツ波は最大で1パルスあたり110 nJ発生し、発生効率は 2.0×10^{-4} であった。この発生効率は先行研究と比較して妥当な値である [7].

3 テラヘルツ波計測系 THz-TDS

発生したテラヘルツ波の電界波形を計測するため、THz-TDS (Terahertz-Time Domain Spectroscopy)を構築した。THz-TDSの実験系をFig. 4に示す。

CPAからの繰り返し周波数1 kHzの増幅パルスはテラヘルツ発生ポンプパルスとプローブパルスに分割され、ポンプパルスはFTL(Fouier Transform limited)パルスでテラヘルツ波発生系に入射する。発生したテラヘルツ波は軸外し放物面鏡により厚さ1 mmの<110>ZnTe結晶に集光される。プローブ光はp偏光でZnTe結晶に入射し、テラヘルツ波によって楕円偏光になった後、 $\lambda/4$ 板によりリタデーション $\pi/2$ を与えられる。これをウォラストンプリ

ズムによりs偏光とp偏光を分離し、パランスフォトディテクタによりそれぞれの偏光成分のパワーの差が出力される。この出力を遅延光学系を移動させては記録することでテラヘルツ波の電界波形が再生される。ZnTe結晶の厚さは、波長800 nmとテラヘルツ波のコヒーレンス長を計算 [8]し(Fig. 5)、LN結晶から発生できる0~2.5 THzを検出できるよう、厚さ1 mmを選択した。

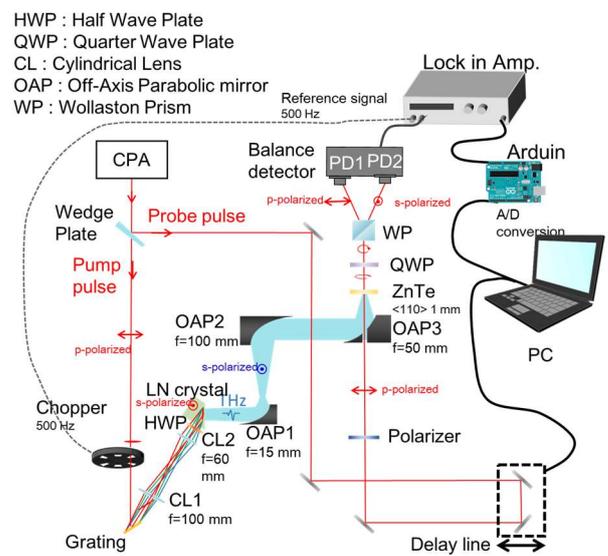


Fig. 4 THz-TDS experimental setup

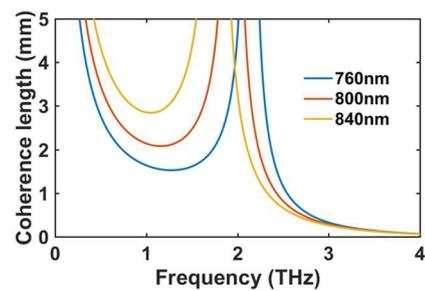


Fig. 5 Calculated ZnTe coherence length

また、<110>ZnTeでは結晶のz軸に垂直な電界に対して最も大きなEO効果を示し [9], LN結晶でテラヘルツ波はs偏光で発生することから、ZnTeのz軸は水平方向に設置した。計測されたテラヘルツ波電界波形、フーリエ変換して得られたテラヘル

ツスペクトルを Fig. 6(a),(b)に示す.

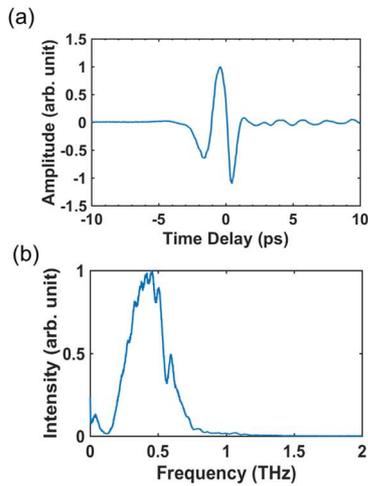


Fig. 6 (a) Measured terahertz waveform and (b) terahertz spectrum

波面傾斜法によって発生するテラヘルツ波のスペクトルはポンプパルスのパルス幅に依存し, 今回実験で用いたパルス幅 50 fs でポンプした場合, 中心周波数 1 THz で 2~3 THz 程度まで広がるテラヘルツスペクトルが得られるはずである [6]. しかし, 今回の計測で得られたテラヘルツスペクトルは中心周波数 0.5 THz で, 広がり 1 THz 程度までであった. これを改善するために行った試みを次の章で述べる.

4 テラヘルツ波の広帯域化のための実験系改良

前章で述べたように, 計測されたテラヘルツ波のスペクトルが先行研究と比較して狭帯域であったため, テラヘルツ波のスペクトルを広帯域化するために発生系の最適化を行った. まず, 回折格子の像を写像するレンズの焦点距離が短いと, 色収差や球面収差の影響で LN 結晶内での回折格子の像が歪曲するという計算結果が報告されている [6]. LN

結晶内でのテラヘルツ波の伝搬距離が長くなると, 高周波成分は LN 結晶に吸収されてしまうため, LN 結晶から出射されるテラヘルツ波は狭帯域化されると思われる. このことから, 4f 光学系を構成するレンズの焦点距離を長くすることでテラヘルツスペクトルが広帯域化するのではないかと考え, レンズの焦点距離を変更した. 3つの焦点距離の組み合わせでテラヘルツ波を発生したときに計測されたテラヘルツ波の電界波形, スペクトルを Fig. 7 (a), (b)に示す.

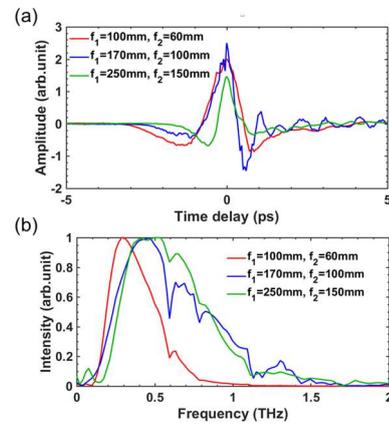


Fig. 7 (a) Terahertz waveform and (b) spectrum measured when changing the lens constituting the 4f system

レンズの焦点距離が $f=100, 60\text{ mm}$ の組み合わせと $f=170, 100\text{ mm}$ の組み合わせのときには大きな差が見られたが, $f=170, 100\text{ mm}$ の組み合わせと $f=250, 150\text{ mm}$ の組み合わせの間には大きな改善は見られなかった.

次に, ポンプパルスに高次分散が乗っていることにより, LN 結晶内でパルスが時間的に十分に圧縮できていないことが原因ではないかと考え, ポンプパルスの帯域を制限して高次分散の影響を軽減したときに発生するテラヘルツ波のスペクトルを計測した. テラヘルツをポンプしたポンプ光のスペクトル

ると、発生したテラヘルツ波のスペクトルを Fig. 8(a), (b), (c)に示す。

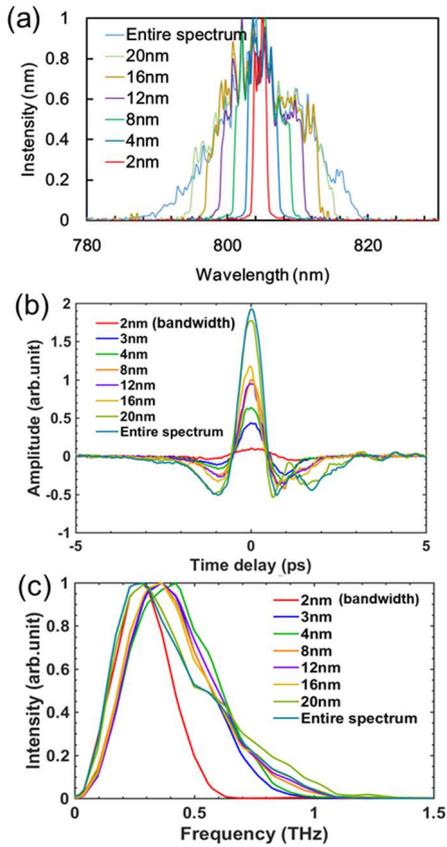


Fig. 8 (a) Spectrum of pump pulse, (b) Generated THz waveform (c) THz spectrum from each pump bandwidth

ポンプ光の帯域が減少すると、帯域 3~20 nm でテラヘルツ波のピーク強度は弱まるが、帯域にほとんど変化はなかった。高次分散による影響であれば、ポンプパルスの帯域を狭めた時にテラヘルツの帯域は広がるはずであり、この結果から高次分散がテラヘルツ波の帯域を狭めている原因ではないことが分かった。

ほかに考えられるテラヘルツ波の帯域を狭める原因としては、波面の角度がミスアライメントにより設計から外れてしまっていることである [10]. 今後も引き続きテラヘルツ波の帯域の改善の実験を行っていく。

5 福井大学における共同実験

福井大学遠赤外領域研究開発センターの谷正彦先生、北原英明先生、Dmitry S. Bulgarevich 先生との協力の下、高出力 CPA(Spectra-Physics, spitfire, パルス幅 75fs, 中心波長 800 nm, パルスエネルギー 3 mJ)で THz STAMP のための予備実験をさせていただいた。本章では福井大での実験結果の報告をする。

5-1 テラヘルツ波 2次元イメージング

Fig. 9 (a) に示すセットアップで、テラヘルツ波 2次元イメージングを行った。ただし、4f 光学系を構成するレンズは焦点距離 150 mm, 100 mm のものを用いた。遅延時間は EO 結晶の後にバランス検出系を組み、テラヘルツ波のピーク的位置に合わせて調整した。ピーク的位置に遅延時間を合わせた状態で、CPA 内のストレッチャーの調整を行い、バランス検出の信号が最も大きくなるように分散の調整をした。

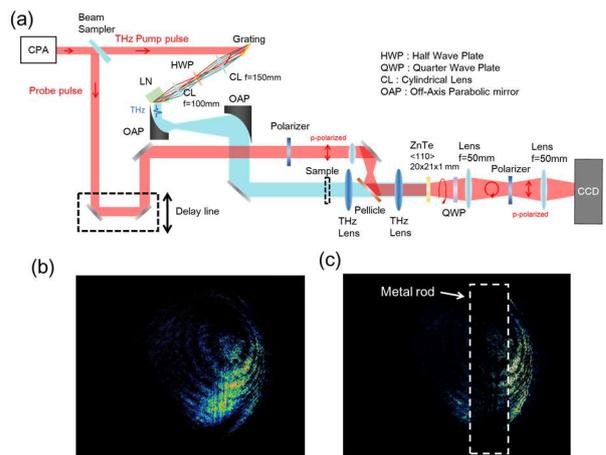


Fig. 9 (a) Experimental setup of terahertz 2D imaging (b) 2D image without target (c) 2D image with target

テラヘルツ波を EO 結晶に入射したときと遮ったときの差分を取ることで THz 波によるプローブの偏光の変調を計測した。計測結果を Fig. 9(b), (c) に示す。テラヘルツ波による変調が計測され、テストターゲットとして幅 3 mm の金属の棒を THz 波のイメージ面に置くと、金属棒の 2 次元イメージが撮影された。今回の計測は 100 パルスの積算であり、シングルショット計測のためには光学系を見直し、SN 比を向上させる必要がある。

5-2 チャーププローブによるテラヘルツ波形計測

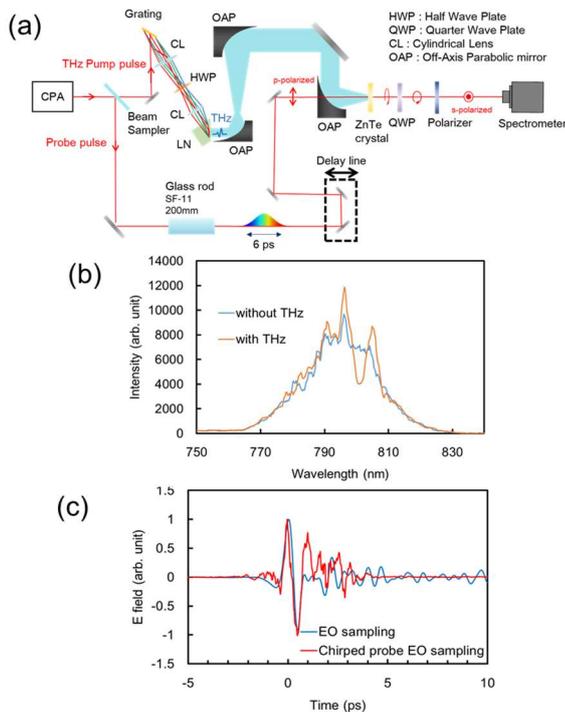


Fig. 10 (a) Experimental setup of THz waveform measurement method utilizing chirped probe (b) Measured spectrum with and without THz modulation (c) Waveform measured by THz-TDS and the waveform measured by chirped probe

THz-STAMP の実験を行う前に、プローブ光をチ

ャープさせた状態でテラヘルツ波とプローブ光の遅延時間合わせを行うため、Fig. 10(a)のようなセットアップで、チャーププローブを用いたスペクトル領域での EO サンプリング波形計測を行った。分光器(Avantes, AvaSpec-ULS2048)によって 2 パルスの積算で計測されたスペクトル、2 つのスペクトルの差から求めたテラヘルツ波形を Fig. 10 (b), (c)に示す。プローブ光はガラス棒(SF-11, 200 mm)の材料分散により、6 ps に伸長されている。THz-TDS によって計測されたテラヘルツ波形と比較すると、大きなピークに着目すると周期に一致が見られ、波形が計測できていることが確認された。

5-3 THz STAMP

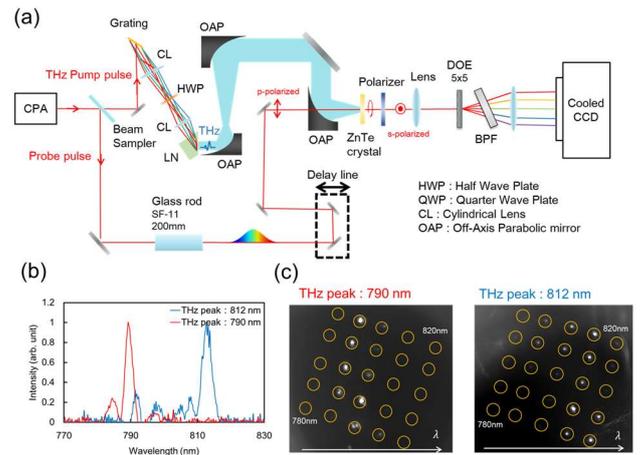


Fig. 11 (a) Experimental setup terahertz STAMP, (b) Transmission spectrum measured at DOE position, (c) Multi spectral image

テラヘルツ波の集光点に EO 結晶を置いて集光点のプロファイルを SF-STAMP によって計測した。Fig. 11 に実験セットアップ (a), 遅延光学系を操作して THz ピークを 790 nm と 812nm にしたそれぞれの場合に DOE の位置に分光器を設置して計測したスペクトル(b), それぞれのピーク位置で計測されたマルチスペクトラルイメージ(c)を示す。マ

ルチスペクトラルイメージは 10 パルスの積算により計測された。遅延時間の操作によってマルチスペクトラルイメージの明るいフレームが別のフレームに移ることが確認され、それぞれの波長に対応する時間のプロファイルが得られていることが確認された。

6 まとめ

本研究では、テラヘルツ領域シングルショット 2 次元超高速イメージング法の開発のため、波面傾斜法によるテラヘルツ波の発生系の構築、THz-TDS システムの構築、テラヘルツ波広帯域化のための発生系改善を行い、帯域 0~1.5 THz, 110 nJ のテラヘルツパルスが発生できていることが確認された。また、福井大学において THz-STAMP のための予備実験を行い、THz-STAMP の原理の確認、今後の問題を確認した。現在、テラヘルツ波の帯域が狭い、2 次元イメージングの SN 比が悪いという 2 点の問題を抱えており、前者に対しては、LN 結晶内の波面の角度の調整、後者に対してはクロスニコル配置の 2 次元イメージング系への変更を行うというアプローチで今後改善を行う予定である。

References

1. W. Withayachumnankul and M. Naftaly, "Fundamentals of Measurement in Terahertz Time-Domain Spectroscopy," *J. Infrared, Millimeter, Terahertz Waves* **35**, 610–637 (2014).
2. S.-L. Chen, Y.-C. Chang, C. Zhang, J. G. Ok, T. Ling, M. T. Mihnev, T. B. Norris, and L. J. Guo, "Efficient real-time detection of terahertz pulse radiation based on photoacoustic conversion by carbon nanotube nanocomposite," *Nat. Photonics* **8**, 537–542 (2014).
3. Zhiping Jiang and Xi-Cheng Zhang, "Measurement of spatio-temporal terahertz field distribution by using chirped pulse technology," *IEEE J. Quantum Electron.* **36**, 1214–1222 (2000).
4. T. Suzuki, F. Isa, L. Fujii, K. Hirose, K. Nakagawa, K. Goda, I. Sakuma, and F. Kannari, "Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP) utilizing spectral filtering," *Opt. Express* **23**, 30512 (2015).
5. H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, "Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃," *Appl. Phys. Lett.* **98**, 91106 (2011).
6. J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, "Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification," *Opt. Express* **18**, 12311 (2010).
7. M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka, "Enhancement of terahertz wave generation by cascaded $\chi^{(2)}$ processes in LiNbO₃," *J. Opt. Soc. Am. B* **26**, A101 (2009).
8. A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz, "A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling," *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2321–2323 (1996).
9. Q. Chen, M. Tani, Z. Jiang, and X.-C. Zhang, "Electro-optic transceivers for terahertz-wave applications," *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 823 (2001).
10. J. Hebling, A. G. Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl, "Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts," *Appl. Phys. B Lasers Opt.* **78**,

593–599 (2004).