

2022年3月

## 空間反転対称性の破れた系を用いたテラヘルツ波の検出

物質系専攻 196036 丸池 文哉

指導教員：貴田 徳明（准教授）

キーワード：テラヘルツ電磁波、圧電体、強誘電体、新規検出方法

### 背景

テラヘルツ波は、 $0.1\sim 10$  THz ( $10^{11}\sim 10^{13}$  Hz)程度の周波数を持つ電磁波で、エレクトロニクスで扱われる電波( $< 10^9$  Hz)とオプティクスで扱われる光( $> 10^{15}$  Hz)の中間に位置する。数十年前までは、テラヘルツ電磁波はエレクトロニクス、オプティクスのどちらの分野においても発生困難で未開拓な領域であったが、近年フェムト秒パルスレーザーの発展により容易に発生が可能となり、現在基礎・応用共に精力的な研究がなされている。周波数1 THz ( $= 10^{12}$  Hz)のテラヘルツ電磁波の波長は300  $\mu\text{m}$ 、光子エネルギーは4 meV、周期は1 psである。

テラヘルツ電磁波の光子エネルギー領域には、強誘電体のソフトモードや磁性体のマグノン、分子性固体の分子の回転や振動、フォノンといった素励起が存在し、これら物性現象に対する分光光源として利用されている。さらに、テラヘルツ電磁波はその小さな光子エネルギーや、光としては比較的遅い周期を利用することで、従来オプティクスで用いられてきた光では不可能だった特殊な応用も可能である。例えば、テラヘルツ電磁波の周期 $\sim 1$  ps  $= 10^{-12}$  sは電子遷移の時間スケールより長いが、格子の変形にかかる時間スケールより短い。これにより単一サイクルのテラヘルツパルス照射すれば試料に損傷域値以上の強電場を印加でき、電子系の強電場効果の探索が行われている。また、テラヘルツ電磁波の光子エネルギー $\sim 4$  meVは電子の遷移エネルギー $\sim 1$  eVより小さいため、電子系に吸収されず、テラヘルツ電磁波を繰り返し照射しても系が熱化することはない。このような特性から、光の照射によって高速・高繰り返しに物性を変調する光スイッチへの応用が期待されている。

これら様々なテラヘルツ波応用の基礎にあるのがテラヘルツ波の時間波形測定である。すなわち、テラヘルツ波の時間波形を測定できるため分光測定では近似を使うことなく光学定数を求めることができ、強電場効果の研究ではテラヘルツ電場のピークに同期させてプローブすることによって強電場効果の測定が可能になり、光スイッチでもテラヘルツ波に同期してプローブすることが必要になる。また、物質から放射されるテラヘルツ波を調べることで物性を詳細に調べることが出来る。強誘電ドメインのイメージングがその例で、強誘電体にフェムト秒パルスレーザーを照射したときに発生するテラヘルツ電場の向きから分極の向きが分かる。この手法では、分極の情報はテラヘルツ電場の向きに含まれているため、テラヘルツ波の時間波形の取得によって始めて可能になる。

テラヘルツ波の時間波形検出法の代表例としてEOS (Electro-Optical Sampling) がある。これは二次非線形光学結晶にテラヘルツ電場を印加すると屈折率に異方性が生じる現象を利用してプローブ光に生じた偏光の変化からテラヘルツ電場を検出する方法である。一般に空間反転対称性の破れた物質は二次の非線形性を持つ。しかし従来検出素子として用いられてきたのは、ZnTe や GaP といった一部の物質であった。これは、EOS を行うためには二次の非線形性の他にテラヘルツ波やプローブ光に対して透明であることやコヒーレンスの条件を満たさなければならない

からである。

本研究では、従来 EOS に用いられていなかった圧電帯  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ 、 $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  や有機強誘電体クロコニ酸を用いて EOS を試みた。新たな物質による EOS では、従来測定できなかった周波数帯で測定できるようになる可能性がある。また、 $\text{ZnTe}$  を用いて同一結晶上でのテラヘルツ電磁波の発生と検出を試みた。すなわち、 $\text{ZnTe}$  で発生したテラヘルツ電磁波が外部に出る前に、その結晶自体をテラヘルツ波検出素子として用いて検出を行った。同一結晶内でテラヘルツ波の発生と検出を行うことは、従来の方法では測定困難だった物質を対象とするテラヘルツ波プローブの物性測定を可能にする可能性がある。例えば、ある結晶から発生するテラヘルツ波を測定することで物性を調べるとする。従来の方法では対象物質で発生したテラヘルツ波はその結晶内を通った後、EO 結晶上に再集光され測定される。この方法で物性を調べられる対象物質には、ある制限がある。すなわち、発生したテラヘルツ波が対象物質全体を通過した後に検出されるのだから、対象物質自体がテラヘルツ波に対して透明で、かつ結晶上の各領域で発生したテラヘルツ波がコヒーレントに重なり強め合わなければならないという制限である。同一結晶上でのテラヘルツ波の放出・検出はこのような問題を解決する可能性がある。つまり、発生したテラヘルツ波が結晶内を長距離動く前に検出することができれば、吸収やコヒーレンスの問題によってテラヘルツ波が弱まる前に検出することができると考えられる。同一結晶内のテラヘルツ波放出・検出が可能になれば、空間反転対称性が破れた二次の非線形性を持つ物質群におけるテラヘルツ波プローブの適用可能性が広がることが期待できる。

## 実験方法と結果

### ・空間反転対称性の破れた系を用いたテラヘルツ波の検出

本実験で用いた光学系を図 1(a)に示す。光源として中心周波数 800 nm、時間幅 100 fs の Ti-Sapphire レーザーパルスを用いた。光源から出た光はビームスプリッターによってテラヘルツ波発生用のポンプ光とテラヘルツ波検出用のプローブ光に分けられる。ポンプ光はレンズによってテラヘルツ波発生素子に集光される。発生したテラヘルツ波は 2 つの放物面鏡によって検出素子に集光される。プローブ光はディレイステージによってポンプ光との時間差を調整された後、レンズによってテラヘルツ波検出素子に集光される。このとき、図 1 の検出素子側の放物面鏡には中心部に直径 1 mm 程度の小さな穴が開いており、テラヘルツ波とプローブ光が同軸に入射する。検出素子を透過したプローブ光はその後、バランスディテクタに入射し、測定される。

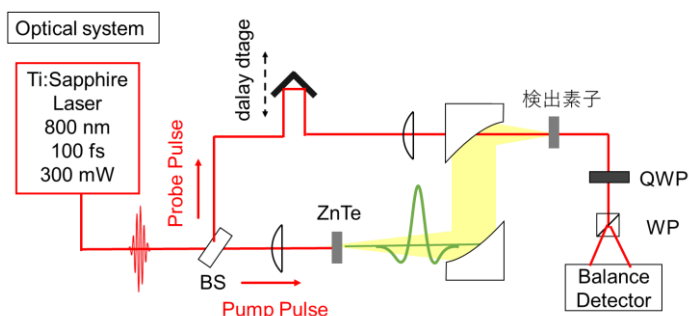


Figure 1. 光学系の概要

空間反転対称性の破れた系として圧電帯  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ 、 $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  や有機強誘電体クロコニ酸を検出素子として用いた EOS を試みた。実験結果を図 2 に示す。テラヘルツ波の放出素子には厚さ 1 mm の  $\text{ZnTe}$  を用いた。図 2(a)はテラヘルツ電磁波の時間波形である。時間波形測定時には EOS の感度が最大になるよう結晶軸を調整した。図 2(b)に示すのは各々の時間波形の規格化された強度スペクトルである。

また、得られたシグナルが EOS によるものであることを確かめるため、検出されるテラヘルツ電磁波振幅のアジマス角依存性を測定した。シグナルが EOS によるものなら、二次非線形感受率 $\chi^{(2)}$ の対称性に依存した角度依存性が現れるはずである。アジマス角の測定は試料を固定したホルダーを回転させることによって行った。

・同一結晶上におけるテラヘルツ波放出・検出

本実験では、1つの ZnTe 試料にポンプ光とプローブ光の両方を入射させ、ポンプ光によって発生したテラヘルツ波をプローブ光によって検出することを試みた。用いた光学系を図 3 に示す。プローブ光路及びオプティカルチョッパーまでのポンプ光路はレンズの手前まで図 1 の光学系と同様である。図 3 の光学系ではポンプ光はレンズによって集光され、プローブ光と同じ試料に斜めに入射される。屈折により ZnTe 試料内では二つの光の光軸の間の角度は6°程度でありおおむね平行である。

同一結晶内検出と、テラヘルツ波の放出と検出を異なる決勝で行う従来の測定方法によって測定されたテラヘルツ波(a)時間波形と(b)規格化強度スペクトルを図 6 に示す。メインシグナルの強度スペクトルを従来の測定方法のものと比較すると、同一結晶上での検出の方が周波数帯域が広がっている。これは、テラヘルツ波が吸収されたりコヒーレンスの破れによって弱まったりする前に検出されたことで、従来の方法では測定できなかった周波数帯域でも測定が可能になったためと考えられる。

【学会発表】

日本物理学会 2019 年秋季大会（口頭発表）

「C<sub>10</sub>-DNBDT-NW 単結晶薄膜電界効果トランジスタの電荷変調分光Ⅱ」

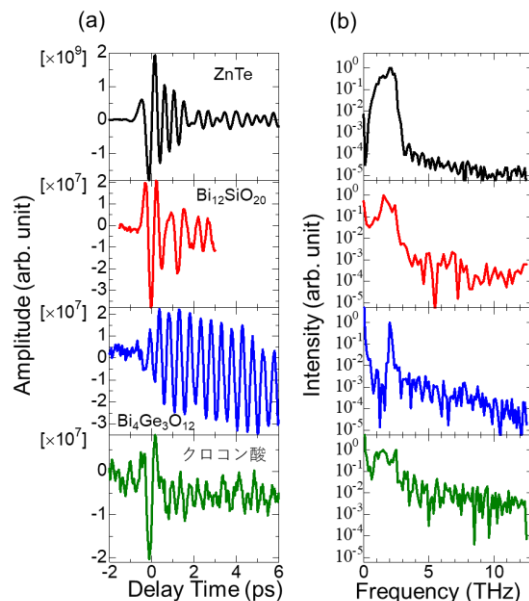


Figure 2. 空間反転対称性の破れた系を用いて測定したテラヘルツ波の(a)時間波形。(b)規格化強度スペクトル。

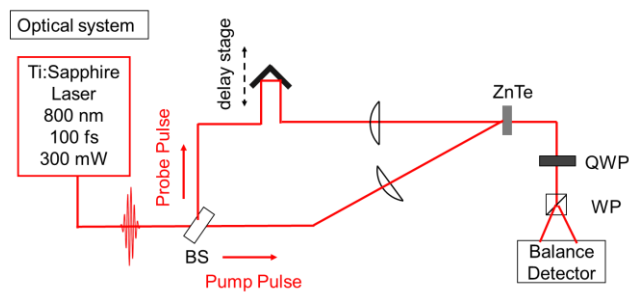


Figure 3 同一結晶上におけるテラヘルツ波放出・検出に用いた光学系。

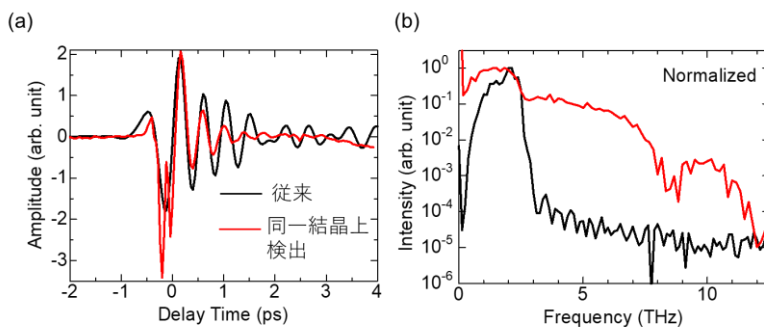


Figure 3. (a)従来の検出方法と同一結晶上検出における(a)時間波形、(b)規格化強度スペクトル。