

バックワード・テラヘルツ波パラメトリック発振の研究と 非破壊検査応用

南出 泰亜, 縄田 耕二, 瀧田 佑馬, 野竹 孝志

理化学研究所 量子工学研究センター (〒 980-0845 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 519-1399)

Study on Backward Terahertz-Wave Parametric Oscillation and Its Application to Nondestructive Testing

Hiroaki MINAMIDE, Kouji NAWATA, Yuma TAKIDA, and Takashi NOTAKE

RIKEN center for Advanced Photonics, RIKEN, 519-1399 Aramaki-aza Aoba, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-0845

(Received December 18, 2021)

We demonstrated backward terahertz-wave parametric oscillation and used optical injection for the forward-propagating idler to increase the output power, reduce the threshold, and stabilize the oscillation. We generated backward-propagating terahertz-wave pulses with a high peak intensity of about 200 W at 0.3 THz. Terahertz-wave imaging was performed using our developed backward terahertz-wave parametric oscillator to confirm its suitability for nondestructive testing applications. Due to the long-time stability of terahertz-wave oscillation, transmission images with good visibility and inside information were obtained by point scanning imaging. As a result of measuring various materials, we found that the system is applicable to versatile nondestructive inspection applications.

Key Words: Terahertz wave, Backward optical parametric oscillation, Nonlinear optics, Non-destructive testing

1. はじめに

近代社会の成熟度と共に様々な新規の材料や構造が発明および開発されている。生産現場では新旧の素材を効率よく利用し、我々の身近な製造物として提供されている。一方、我が国をはじめとして安全安心を強く求める社会環境においては、製造物および既製品の品質検査は極めて重要であり、時代に応じた検査対象の需要が拡大している。これまで、非破壊検査はX線や超音波などを用いた従来技術によって多くの問題を解決してきた。しかし、進化する素材開発や検査環境の中で、マルチモーダル計測の需要が多くあり、かつ新規技術の導入が求められている。

テラヘルツ波(THz波)は電波と光波の間に存在する電磁波で、プラスチック、セラミックス、衣服、紙、木、モルタルなどを透過する性質を持っている。また、各種物質がTHz波領域に固有の指紋スペクトルを持つことから、非破壊検査利用としてTHz波技術に多くの注目が集まり、およそ30年前から世界の研究者が精力的に研究開発を行ってきた。現在では装置開発も進み、一部市場投入も実現されている。一方、LiDARやハイパースペクトルカメラなど光波領域の技術も進展しており、

その開発の流れに引き上げられるようにTHz波による非破壊検査の期待も高度化している。ごく最近のTHz波イメージングの研究は従来の2次元透過イメージから3次元計測へと発展しており¹⁻⁴⁾、さらに人工知能(AI)技術が導入され⁵⁾、対象の判定度や検査精度の向上にも言及されるなど、技術開発が進んでいる。

このように、高度化するTHz波技術に応じてTHz波光源への性能要求は今まで以上に高まっている。我々は、これまで非線形光学効果を用いた波長変換により光波から高出力THz波を発生させる研究を行ってきた。最近ではバルクのニオブ酸リチウム結晶を用いた光注入型テラヘルツ波パラメトリック発生によって最大約100 kWのピーク強度が実現した^{6,7)}。一方で、小型化や3次元計測に必要な広範囲の波長可変性、さらには物質への透過性の高いサブTHz波の高出力発生を同時に満たす光源開発は十分ではなかった。

本稿では、上記要求性能を一手に満たす光源として、周期分極反転ニオブ酸リチウム結晶を用いて発見した新しいバックワード・THz波パラメトリック発振の動作性能について解説し、その魅力と非破壊検査応用への展開について述べる。

2. バックワード・THz波パラメトリック発振

2.1 動作の特長と性能

バックワード・光パラメトリック発振は、1966年にスタンフォード大学のS. E. Harris⁸⁾によって最初に理論提案された独特の位相整合条件下で起こる非線形光学波長変換である。後方伝搬する光波によるフィードバック効果で発振線幅の狭窄化と発振閾値を有した現象である。これまでに光波領域での実証実験⁹⁾や、1996年にはY. J. Dingら¹⁰⁾による周期分極反転非線形結晶を用いたTHz波の発振と波長可変性について理論的予測がなされてきた。しかし、THz波発振の実験では、フェムト秒レーザーを励起光として用いたり¹¹⁾、2波長励起光源による差周波発生¹²⁾を用いた実験結果の報告しかなく、いわゆる単色励起光源によるバックワード・THz波パラメトリック発振およびその波長可変性¹³⁾は我々の報告が最初である。

これは、理論予想では発振閾値の励起光強度が凡そ1 GW/cm²にもなることから結晶の光損傷閾値と近接しているために困難な実験と想定され、実質的に動作条件が明らかになっていなかったことが要因と考えられる。さらに、我々が実現できた理由には、バルクのニオブ酸リチウム結晶を用いたTHz波発生の研究において、誘導ブリルアン散乱の抑制による高出力THz波発生を実現した結果から、近赤外光とTHz波の変換効率が格段に向上していたことが背景にある¹⁴⁾。結晶の持つ性能を引き出したことで、PPLN結晶に励起光を入射するだけでバックワード・THz波パラメトリック発振を実現した。

また、従来の光波領域で使用される周期分極反転ニオブ酸リチウム結晶とは異なり、実際に発振を観測できたのは分極周期や周期角度が大幅に異なる斜周期分極反転ニオブ酸リチウム結晶(Fig. 1)を用いたことによる結果であり意義深い。つまり、一般的な周期分極反転では格子ベクトルと励起光ベクトルが一致したコリニア系となるが、バックワード以外の幾つかの位相整合条件が縮退しており、積極的なバックワード発振が起こらない。斜周期分極反転ではこの縮退条件が解かれ、積極的にバックワード発振がおこる条件に着地する。

このように、バックワード・THz波発振の発振条件の発見によって、より詳しい発振原理や特長がわかってきた。詳細な結果に関しては参考文献^{13,15)}に委ね本稿では割愛し、特長と得られた性能を下記に列記する。

- ①共振器鏡のない発振：アライメントフリー、モードホップフリー(周波数可変時)
- ②広帯域周波数可変：約0.3~0.8 THz
- ③狭線幅発振：約6 GHz
- ④小型、堅牢な構造
- ⑤常温動作

2.2 テラヘルツ波発振の高効率化と安定化

バックワード・THz波パラメトリック発振は、励起光を発振閾値以上の強度で斜周期分極反転ニオブ酸リチウ

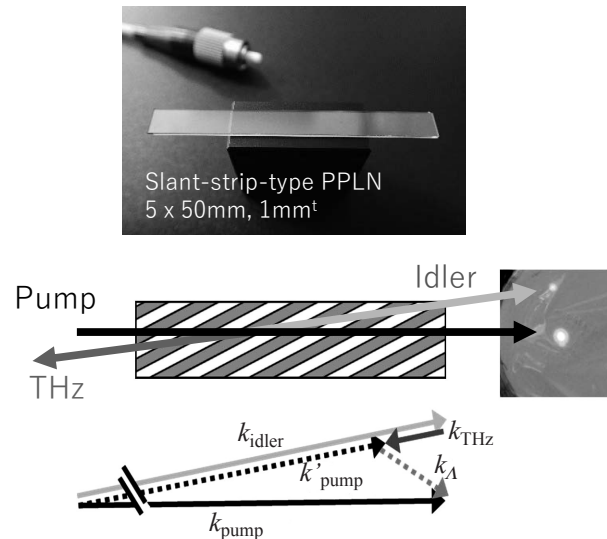


Fig. 1 Photograph of slant-strip-type periodically poled lithium niobate and optical arrangement of the pump beam, idler beam, and THz wave with the diagram of wave vectors (k_{pump} : pump, k_{idler} : idler, k_{THz} : THz, k'_{pump} : Projective component of k_{pump} , and k_{Λ} : lattice).

ム結晶に入射するだけで起こる現象で、その簡便な構成からユビキタスに利用できるTHz波光源としての価値が高い。一方、応用面では安定した計測が求められる場面が多く、例えばTHz波イメージングを行う場合に、測定対象物の反射率や透過率の微小な違いを評価する際や、分光特性で絶対量を求める場合などではパルス光源の出力揺らぎは計測精度問題に直面する課題となる。

また、同一結晶内でバックワード発振以外にも類似した波長変換過程としてフォワード側へのTHz波発生も生じる¹³⁾。このフォワード・THz波発生は、励起光の入力エネルギーを増大させると起こるため、バックワード発振の安定化のために、励起光強度を増やす方法は、単純には利用できない。

これら問題点を解決し、かつ、より高出力なTHz波発振を実現する方法として、アイドラー光への光注入¹⁵⁾が有効である。具体的には、光注入光源としてFig. 2に示すように、励起光源とは別に外部共振器型波長可変光源からの出力を、光ファイバ増幅器で500 mW程度まで増幅した連続光を用いた。本実験では、THz波の周波数を約0.3 THzになるように結晶の格子ベクトルと励起光

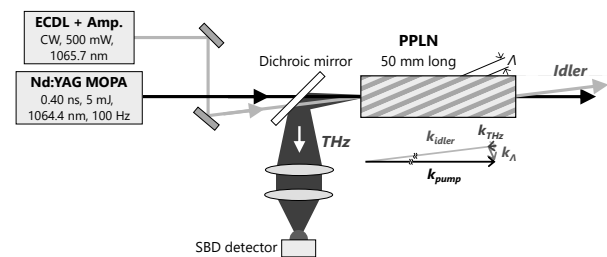


Fig. 2 Schematic diagram of the injection-seeded backward terahertz-wave parametric oscillator.

の伝搬ベクトルのなす角を固定した。また光注入は最適な波長に同調している。励起光源はマイクロチップレーザー(波長 1064.4 nm, パルス出力 5 mJ/pulse, パルス幅 400 ps, 繰り返し周波数 100 Hz)を用いた。斜周期分極反転ニオブ酸リチウム結晶の分極周期は 53 μm で、励起光を結晶の入射面に垂直に入射したとき、励起光伝搬ベクトルと格子ベクトルのなす角が 67° になるように設計および製作された。

Fig. 3 に励起光エネルギーを変化させたときのテラヘルツ波出力の変化について実験結果を示す。光注入を行わない場合、発振閾値は励起光エネルギー約 3.5 mJ/pulse であった。一方、波長 1065.7 nm および光パワー 480 mW の連続光を光注入した場合、発振閾値は約 1.3 mJ/pulse と 63% の閾値低下率が得られた。また、実験で光注入の入力パワーを変化させてアイドラー光の出力を計測した結果、約 20 mW の僅かな光注入で最大アイドラー光出力の約 70% に達することがわかり、光注入の有効性が確かめられている。

さらに、バックワード・THz 波パラメトリック発振では、THz 波の発振波長は主として格子ベクトルと励起光伝搬ベクトルとのなす角により決定され、励起光波長に対しては許容範囲が広く、アイドラー光が次のバックワード発振過程の励起光となるカスケード発振が実現できる。カスケード過程によって変換される THz 波の波長が変化しない場合、エネルギー変換則における Manley-Rowe 関係から THz 波の光子数を各段に増大できる。Fig. 3 のプロットはすべての THz 波出力を測定した結果であるが、励起光入力約 3 mJ/pulse を上回ると 2 次過程が発現し、これを受けて励起光入力の増大とともに THz 波出力が単調に増加している。

次に、THz 波出力に関して、別の実験結果を Fig. 4 に示す。実験では THz 波周波数として 0.3 THz および 0.5 THz の発振が得られるように、分極反転周期の異なる 2 種類の斜周期分極反転ニオブ酸リチウム結晶を用いた。それぞれ周期は 53 μm および 35 μm とした。また、

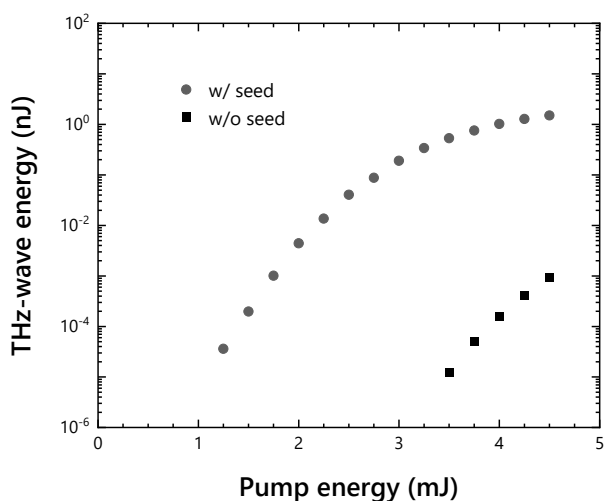


Fig. 3 Normalized backward terahertz-wave output as a function of the input pump energy with and without optical seeding.

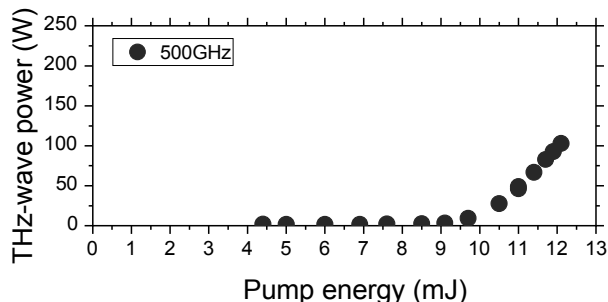
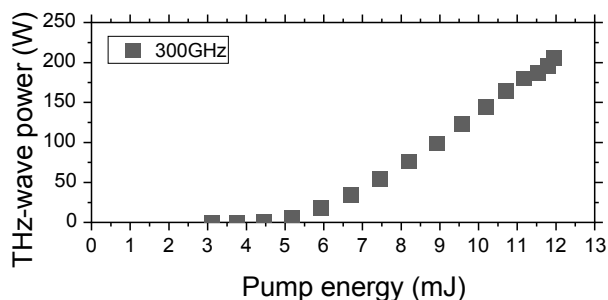


Fig. 4 Terahertz-wave outputs at 0.3 and 0.5 THz as a function of the input pump energy.

両結晶の入射面に対して励起光を垂直に入力したとき、励起光ベクトルとグレーティングベクトルのなす角度は約 67° とした。励起光パルス時間幅と注入光パワーは、0.3 THz および 0.5 THz に対して半値全幅で約 800 ps と約 730 ps, 約 500 mW と約 520 mW であった。

結果として、励起光エネルギー約 12 mJ/pulse のとき、周波数 0.3 THz と 0.5 THz のパルス尖頭値パワーがそれぞれ約 200 W と約 100 W が得られた。100 W を越える出力は、ジャイロトロンなどの大型装置からの出力に匹敵し、レーザーベースの小型装置で達成していることは特筆すべき性能である。また、非破壊検査応用では THz 波吸収の大きい素材を計測対象にすることが多いため、THz 波出力が大きいことは「見え方」に違いが現れるため重要な要素である。

他にも光注入による計測への利点は、発振初期値を外部より与えるため発振の出力安定性を向上できることにある。Fig. 5 は THz 波パルスをショットキーバリアダイオード(SBD)検出器によって検出し、その出力値をパルス毎に示した結果である。レーザーの繰り返し周波数は 100 Hz である。光注入がない場合では THz 波出力のバラつきが非常に大きい。光注入を行った場合では標準偏差は 1% 程度となり劇的な発振安定性の向上を実現した。各種センシングやイメージングでは、計測精度や計測時間の短縮のため、安定した出力が求められる。また、安定した出力が得られることで計測の際の平均化の回数を減らすことができ、場合によってはシングルショットで測定した結果から全測定データの相対評価を行うことも可能である。特に THz 波イメージングを行う場合、例えば THz 波をレンズで絞る、焦点位置でサンプルを 2 次元スキャンして 1 万画素などの画像取得を行うときには、計測中に光源出力が安定していないと画像化した際に濃淡の偏りが生じ、視覚的な不具合を感じる結果と

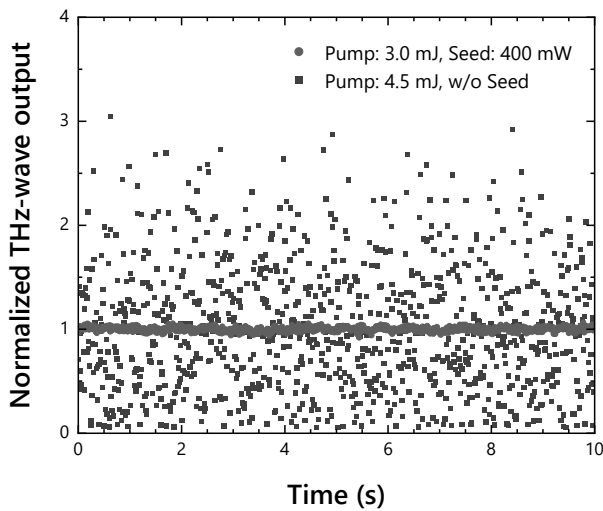


Fig. 5 Normalized pulse-to-pulse outputs of the terahertz waves detected by Schottky barrier diode (SBD).

なってしまう。画像処理技術は進んでいるが、計測時のデータの信頼性を担保することは後段のデジタル処理を容易にするばかりでなく、見えなかったものが見えるようにする点で重要である。さらに、THz波用のアレイ検出器の開発も進んでおり、光源の出力が大きければ、広く照射しても各検出素子に届く光量も上昇するため、イメージングの「明るさ」に違いがある。

3. テラヘルツ波非破壊検査応用

広大な THz 波領域の中でも、周波数 1 THz 以下のサブ THz 波は、周波数が低いほど物質の透過性が高くなり、逆に周波数が高いほどイメージングでの空間分解能が良くなる。非破壊検査のツールとして、THz 波の価値とバックワード・THz 波パラメトリック発振器の性能を検証するため、幾つかのサンプルについて透過イメージングの実施例を示す。

イメージング実験系では、発振器から放射された THz 波をレンズで平行光にした後、焦点距離 100 mm のレンズで集光してサンプルに照射した。サンプルを透過した THz 波は、SBD 検出器 (ACST 社製) にレンズを用いて集光して検出した。この時、焦点距離 50 mm レンズをサンプルから距離 100 mm 後方に離れた場所に配置して検出器に集光した。これはレンズ表面には無反射コートが施されていないため、フレネル損失を最小にするため 2 枚のレンズで検出器に結合するように工夫したものである。

Fig. 6 から Fig. 10 に THz 波イメージングの結果を示す。THz 波は 0.3 THz を照射した。各イメージは、サンプルを 2 次元にスキャンして 1 mm 移動させるごとに透過 THz 波強度を計測した。測定データはコンピュータ上でグレースケール画像にした。白は透過率が高く、黒が低いことを示している。各イメージ内 (ピクセル間) の透過率は相対的に比較できるが、イメージ間の透過性はそれぞれで視認性を調整しているため比較できない。

Fig. 6 はプラスチックの玉を発射できる玩具銃を表面

に凹凸のあるガラス (デザインガラス) 越しに測定した結果である。THz 波の照射はガラス側から照射した。結果として、プラスチック製玩具銃の内部にある空洞が確認され空間分解も良く、各内部の情報として視覚的クリアな画像が得られた。

Fig. 7 は人工皮革製のバッグにハサミを入れて測定した結果である。バッグの内外には小物が入るように幾つか皮の仕切りが設けられている。人工皮革は THz 波の

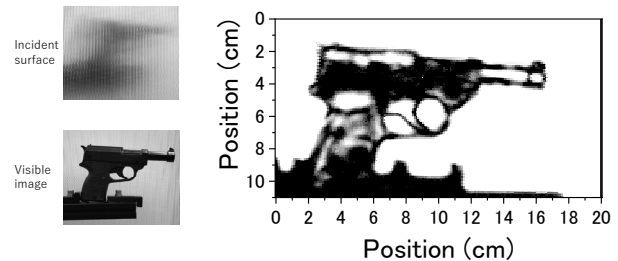


Fig. 6 (Upper left) Visible image of a toy gun seen through glass with uneven surface. (Lower left) Visible image of the gun without any screening. (Right) Transmitted terahertz-wave image with logarithmic gray scale.

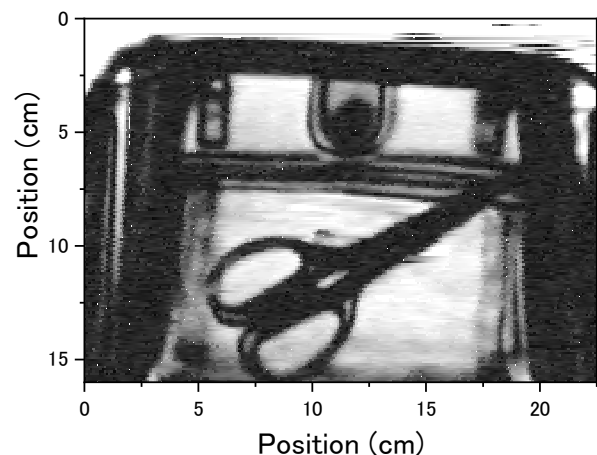


Fig. 7 (Top) Visible image of an artificial leather bag. (Bottom) Transmitted terahertz-wave image with logarithmic gray scale.

透過性が良く、内部の様子をクリアに見ることができた。

Fig. 8 は厚さ 2.7 cm の木材に釘を打ち、側面から THz 波を照射して観察した結果である。釘が木の内部で止まっている様子が確認できる。また、木目に沿った内部の構造とみられる情報も透過測定で得られている。

Fig. 9 は極性の有無が異なる各種溶液(左からアセトン、灯油、水道水、オレイン酸、N-メチル-2-ピロリドン)の透過 THz 波イメージである。液体は石英ガラスセルに入れた状態で透過計測を行った。灯油やオレイン酸は極性がなく THz 波透過率が高いことを示している。

Fig. 10 は表面に凹凸のあるタイルの裏側に光ファイバケーブルを張り付けて測定した結果である。タイル表面の凹凸によって THz 波が散乱されてイメージにムラが発生している様子がわかるが、イメージングによってケーブル状の連続した物体が存在することを確認できる。

実際に非破壊検査を行う場合、様々な物質の THz 波応答を知っておく必要がある。特に吸収の大小は物質によって大きく異なるため、透過特性は重要な情報である。Fig. 11 に周波数 0.3 THz でのサンプルの透過特性を評価

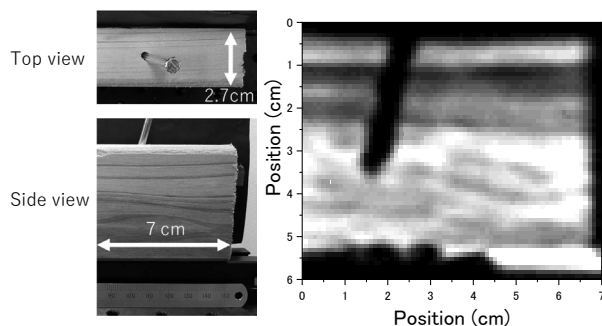


Fig. 8 (Upper left) Visible image of a nailed wood from top view. (Lower left) Side view of the wood. (Right) Transmitted terahertz-wave image with linear gray scale.

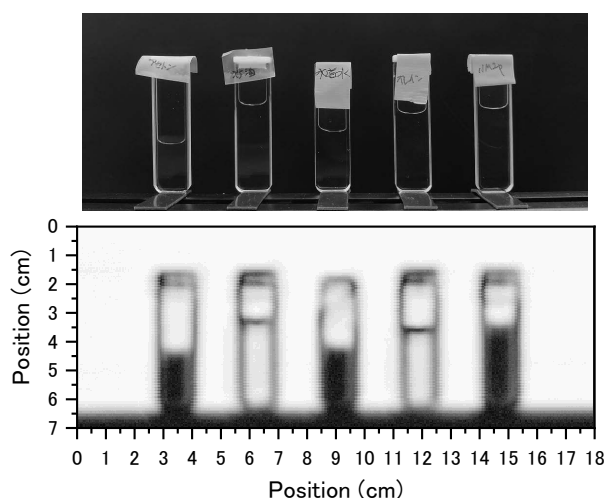


Fig. 9 (Top) Visible image of liquids in quartz glass cells. From left to right: acetone, kerosene, tap water, oleic acid, N-methylpyrrolidone. (Bottom) Transmitted terahertz-wave image with logarithmic gray scale.

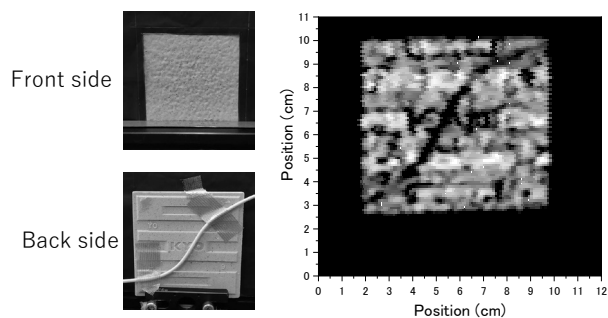


Fig. 10 (Upper left) Visible image of a tile with rough surface irradiated by terahertz waves. (Lower left) Visible image of the backside with optical fiber cable attached. (Right) Transmitted terahertz-wave image with logarithmic gray scale.

THz-wave transmission			
High			Low
$T 10^0 \sim 10^1$	$T 10^{-2} \sim 10^{-3}$	$T 10^{-4} \sim 10^{-5}$	$T < 10^{-6}$
Polystyrene foam	Porcelain (plate)	Black rubber plate **	CFRP *
Polyethylene bag	Monolithic glass	Wood (building materials)	GFRP *
Resin Board *	Wooden board **	Concrete	*
A sheet of paper	Designed plate glass	Inorganic polar solvent (e.g., water) *	
Kerosene *	Designed tile	Organic polar solvents (acetone, NMP, etc.) *	
Unsaturated fatty acid *	Powder ***		
Synthetic cloth			
Synthetic leather			
Tile			

* Equivalent to 1 mm thickness
 ** Equivalent to 1 cm thickness
 *** Equivalent to 2 mm thickness

Fig. 11 Summary of transmittance of various materials at 0.3 THz. The transmittances are described in approximate order as a guide.

した結果をまとめる。サンプルは市場で入手できるもので標準的なものを選んだ。

4. まとめ

サブ THz 波は、非破壊検査応用に適した電磁波として今後実利用が進むことが予想されている。本稿ではバックワード・THz 波パラメトリック発振を用いて様々なサンプルの透過イメージングを行った。尖頭値 200 W の高強度 THz 波発生を実現したことで、ますます適応範囲が広がることを期待している。今後、波長可変性を有する本光源を用いて、分光情報が取得できるハイパースペクトルイメージングを実現したいと考えている。

謝 辞

本研究は日本学術振興会科研費(JP19KK0382, JP19K05286, JP18H01906)、JSPS-NSFC 二国間交流事業(JPJSBP120207407)、防衛装備庁が実施する安全保障技術研究推進制度 JPJ004596 の支援を受けて行われました。

本研究に関して議論頂いた理研/東北大学の伊藤 弘昌教授、東北大学の熊野 勝文教授、理研テラヘルツ光源研究チームに関わる皆様に感謝いたします。

参考文献

- 1) K. H. Jin, Y.-G. Kim, S. H. Cho, J. C. Ye, and D.-S. Yee: *Opt. Express* **20** (2012) 25432.
- 2) T. Nagatsuma, H. Nishii, and T. Ikeo: *Photon. Res.* **2** (2014) B64.
- 3) W. Tu, S. Zhong, A. Incecik, and X. Fu: *Ocean Eng.* **155** (2018) 382.
- 4) F. Friederich, K. H. May, B. Baccouche, C. Matheis, M. Bauer, J. Jonuscheit, M. Moor, D. Denman, J. Bramble, and N. Savage: *Photonics* **5** (2018) 1.
- 5) V. Gintaras, A. Lissauskas, H. Yuan, W. Knap, and H. G. Roskos: *Sensors* **21** (2021) 4092.
- 6) S. Hayashi, K. Nawata, T. Taira, J. Shikata, K. Kawase, and H. Minamide: *Sci. Rep.* **4** (2014) 5045.
- 7) H. Minamide, S. Hayashi, K. Nawata, T. Taira, J. Shikata, and K. Kawase: *J. Infrared, Millimeter, Terahertz Waves* **35** (2014) 25.
- 8) S. E. Harris: *Appl. Phys. Lett.* **9** (1966) 114.
- 9) C. Canalias and V. Pasiskevicius: *Nat. Photon.* **1** (2007) 459.
- 10) Y. J. Ding and J. B. Khurgin: *IEEE J. Quantum Electron.* **32** (1996) 1574.
- 11) Y.-S. Lee, T. Meade, V. Perlin, H. Winful, T. B. Norris, and A. Galvanauskas: *Appl. Phys. Lett.* **76** (2000) 2505.
- 12) T. D. Wang, S. T. Lin, Y. Y. Lin, F. Y. Lin, and Y. C. Huang: *Opt. Express* **16** (2008) 6471.
- 13) K. Nawata, Y. Tokizane, Y. Takida, and H. Minamide: *Sci. Rep.* **9** (2019) 726.
- 14) K. Nawata, S. Hayashi, H. Ishizuki, K. Murate, K. Imayama, Y. Takida, V. Yahia, T. Taira, K. Kawase, and H. Minamide: *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.* **7** (2017) 617.
- 15) Y. Takida, K. Nawata, and H. Minamide: *APL Photonics* **5** (2020) 061301.