

シリコン内光誘起キャリアによるドップラー反射を用いた テラヘルツ光の高周波数シフト

(量研機構・関西研) ○河野 七瀬, 坪内 雅明

Frequency up-shift of THz light via Doppler reflection by photo-induced carriers in Si

(QST, KPSI) ○Nanase Kohno, Masaaki Tsubouchi

【序】電波と光の中間領域であるテラヘルツ(THz)周波数帯は、小さな分子の回転や、固体の格子振動、また、液相中の水素結合を介した分子間振動など多くの低周波数モードの運動に対応するため、THz 分光は物理化学や分子生物分野等において強力なツールとなっている。THz 光の発生手法として非線形光学結晶にフェムト秒レーザー光を照射する光整流法が現在広く用いられている。本手法は高い効率で安定に THz 光を発生させることができるが、THz 光の結晶による吸収、分散による位相整合の制約などから、発生 THz 光の周波数帯が低周波数領域(≤ 3 THz)に制限される。周波数の広帯域化には、励起光のパルス幅圧縮や、THz-自由電子レーザー等の使用が挙げられるが、本研究では簡便な周波数変換法として THz 光のドップラー反射による周波数シフトに着目した。

光速に近い速度で近づくミラーにより光が反射された際、ドップラー効果により周波数が高周波数シフトする。本研究では、THz 光を反射するミラーとして、半導体を光励起した際に発生する自由電子(キャリア)の膜を用いた。キャリアは、その密度に応じた固有の周波数(プラズマ周波数)をもち、その周波数よりも低い周波数の光を反射する(プラズマ反射)。半導体を光励起すると、励起光はキャリアを生成しながら半導体内部へ浸透するため、生成したキャリアは励起光の速度に近い速度で進行するプラズマミラーとしてふるまう。この時、プラズマミラーと対向に THz 光を照射すると、プラズマミラーによりドップラー反射され、THz 光は高周波数シフトする。上記のスキームによる THz 光の周波数シフトは、Roskos ら^{1,2}によって実証されたが、その詳細なメカニズムについてはまだ完全には明らかになっていない。本研究では、THz 時間領域分光法(THz-TDS)を用いて光励起直後のキャリアダイナミクス、およびキャリアによる THz 光のドップラー反射メカニズムの解明を行い、THz 領域における周波数制御法の検討を行った。

【実験】実験では、半導体にシリコン(Si)、励起光に波長 800 nm のパルス光を用いた。Si は THz 光を透過し、800 nm の励起光を吸収してキャリアを発生する。また、本研究では簡便な光学素子配置でキャリアと THz 光の対向配置を実現させるため、同方向から THz 光と励起光を照射し、裏面反射した THz 光をプラズマミラーと相互作用させるスキームを用いた(図 1)³。本手法では、図 1 に示される 2 つのパルス A と B を時間的に分けて観測し、プラズマミラーと相互作用したパルス B に着目してドップラー反射機構を精査した。

光源には、Ti:Sa 再生増幅器により発生させた 800 nm(1

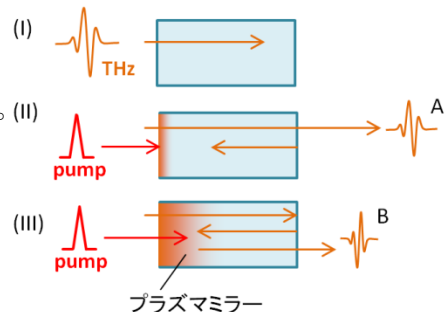


図 1. ドップラー反射スキーム。(I) Si に THz 光を照射する。(II)裏面に到達した一部の光はそのまま透過し(パルス A)、残りはフレネル反射し再び表面近傍に戻る(パルス B)。パルス B が表面に到達する前に、Si 表面に励起光を照射し、プラズマミラーを生成する。(III)パルス B は再びプラズマミラーにより反射され、検出器に到達する。

kHz, 55 fs, 1.5 mJ)のフェムト秒パルス光を用いた。上記のパルス光を3つに分け、それぞれ THz 光の発生、検出、プラズマミラー生成のための励起光とした。THz 光は非線形光学結晶 LiNbO_3 内での光整流過程により発生させ(0.1 ~ 1.5 THz), ZnTe 結晶を使った電気光学サンプリングにより検出した。上記の手法では位相が固定された THz パルスが発生し、その電場波形の観測が可能であり(図 2 (a)), 電場波形のフーリエ変換から THz 光スペクトルが得られる。また、THz 電場波形の解析から、半導体内のキャリア密度分布やその時間変化を求めることができる。

【結果および考察】図 2(a)に励起光に対する THz 光照射遅延時間 Δt を掃引しながら観測した、パルス B の電場波形を示す。 $\Delta t = 0$ ps は Si の表面に励起光と一度裏面で反射したパルス B が同時に到達する時刻とした。パルス B がプラズマミラーの影響を受ける時刻($\Delta t > 0$)では、プラズマ反射による THz 波形の位相の反転だけでなく、早い方向への検出時間のシフトが観測された(図 2 (a), 矢印)。これは、プラズマミラーが有限の膜厚をもつために生じる。続いて、より細かい時間間隔で Δt を掃引しながら THz 電場波形を観測し、フーリエ変換により周波数スペクトルを得た(図 2(b))。 $\Delta t = 0$ 付近でのみ高周波数シフトが観測され、これは励起光の浸透とともに Si 内部に進行するプラズマミラーによって THz 光がドップラー反射されたことを示す。さらに時間が経つと、励起光が完全に Si に吸収されて静的なプラズマミラーとなり、ドップラー反射は生じなくなるためシフト成分は消失する。

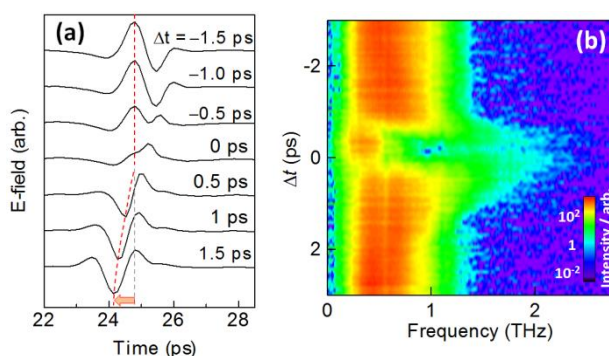


図 2. (a)THz 電場波形および(b)周波数スペクトルの THz 光照射遅延時間 Δt 依存性。励起光強度: $2.7 \mu\text{J mm}^{-2}$ 。

図 3 (a)に 3つの励起光強度で観測した THz 光の電場波形二次元プロットを示す。励起光の強度が高くなるにつれて検出時間のシフト、つまり、プラズマミラーの膜厚は増加した(図 3 (a), 白点線)。また、これらの電場波形をフーリエ変換した結果を図 3 (b)に示す。励起光強度の増大にともない、周波数のシフト量は増加した。ドップラー反射による周波数シフトの式は励起光強度にあらわに依存しないが、これは図 3 (b)の結果と矛盾する。そこで、THz パルスの一部のみが進行プラズマミラーと相互作用することを考慮したモデルを構築し、実験結果の説明を試みた。上記のモデルを用いて、様々な励起光強度における周波数シフト量を算出した結果、励起光強度の増大にともないシフト量は対数的に増大した(図 3 (c))。これは、励起光強度の増大にともないプラズマミラーの膜厚が増加することで、進行プラズマミラーと THz 光の相互作用時間が延び、周波数シフト量が増大していることを表している。

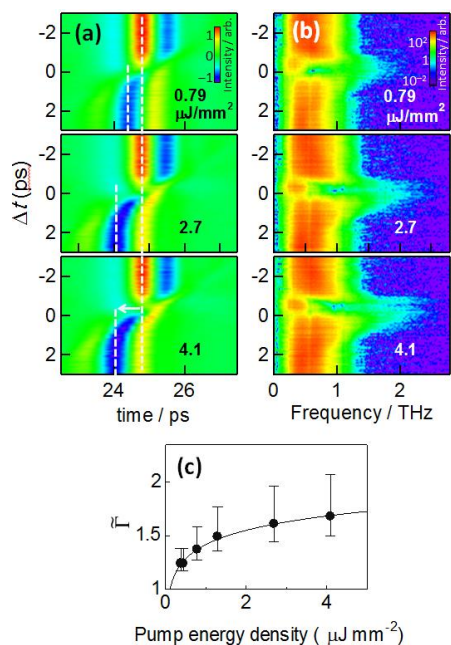


図 3. 励起光強度 $0.79, 2.7, 4.1 \mu\text{J mm}^{-2}$ における (a)THz 電場波形および(b)周波数スペクトルの Δt 依存性。縦軸は Δt , 横軸は(a)検出時間および(b)周波数。(c)周波数シフト量の励起光強度依存性。縦軸は反射 THz 光の平均周波数を入射 THz 光の平均周波数で割った値。

【参考文献】 [1] M. D. Thomson, *et al.*, *Phys. Rev. B*, vol. 87, pp. 085203, 2013. [2] F. Meng, *et al.*, *Phys. Rev. B*, vol. 90, pp. 155207, 2014. [3] M. Tsubouchi, *et al.*, *Opt. Lett.*, vol. 37, pp. 3528–3530, 2012.