

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月31日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2012

課題番号：23760058

研究課題名（和文） 超広帯域テラヘルツ全反射減衰分光システム開発と水の相転移時における分子間振動計測

研究課題名（英文） Development of ultra-wideband THz ATR spectroscopy system and measurement of intermolecular vibrations in phase shift of water

研究代表者

野竹 孝志 (NOTAKE TAKASHI)

独立行政法人理化学研究所・テラヘルツ光源研究チーム・特別研究員

研究者番号：70413995

研究成果の概要（和文）：

本研究の目的は、今まで発生・検出が困難であった1～20THzにおよぶ超広帯域分光システムを開発し、水が相転移する際に、10THz近傍に存在すると考えられている水分子間の伸縮・秤動振動モードの吸収スペクトルが、どの様に変化するかを観測する事である。

DAST及びBNA結晶を用いた超広帯域全反射減衰分光システムを開発し、水に対する分光計測を試みたが、THz光の透過率が低く、まだ有意な信号は観測できていない。現在、SN比改善のためにシステムを改良中である。

研究成果の概要（英文）：

The purpose of this research is to develop ultra-wideband THz spectroscopy system which can generate and detect from 1 to 20 THz waves. Then, to observe difference of absorptions caused by stretching and libration vibration modes between water molecules by using the system.

We developed ATR spectroscopy system by using DAST and BNA crystals and then tried to spectroscopy measurement for water samples. Because of large absorption due to water and silicon prisme, no clear transmittance signals can be obtained yet. Modification of SN ratio of the system is under development.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用光学・量子光工学

キーワード：テラヘルツ、全反射減衰分光、

1. 研究開始当初の背景

THz 光領域は電磁波スペクトルの谷間領域と言われ、発生・検出が困難な研究領域であった。しかしながら、ミリ波電子デバイス、

フォトリソ技術双方からのアプローチにより次第に1～3THz領域での発生・検出が可能となり、次第に応用研究も進展してきた。しかしながら、3THz以上の高周波領域では

発生・検出はまだ困難な状況であり、応用研究も進んでいなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、今まで発生・検出が困難であったテラヘルツ周波数領域をカバーする、超広帯域・高感度分光システムを開発し、生命にとって極めて重要な物質である水の特性を明らかにする為の基礎研究を行う事である。具体的には、1~20THzにおよぶ超広帯域分光システムを開発し、10THz近傍に存在すると考えられている水分子間の伸縮振動モード及び稜動振動モードに着目し、液相の水が、過冷却状態や結晶氷、アモルファス氷といった異なる相に転移する際に、これら分子間振動モードの吸収スペクトルが、どの様に変化するかを観測する事を目指す。

3. 研究の方法

我々は、有機非線形結晶BNAと2次非線形光学効果を用いた独自技術によって、従来の光伝導アンテナやパラメトリック発振によるテラヘルツ波発生周波数帯域(約0.1~3THz)を一桁拡張する、超広帯域波長可変 (0.5~20THz) テラヘルツ光源の開発に成功した。この超広帯域テラヘルツ発生技術の逆過程を利用する事で、テラヘルツ波を超広帯域にわたり高感度で常温検出する事も可能となる。

4. 研究成果

初年度は有機非線形結晶であるDAST及びBNA結晶を用いた超広帯域THz波発生・検出システムを用いた分光システムを構築した。そのために、新規結晶であるBNAに対する位相整合条件を明らかにする為、BBOを用いた355nm励起による超広帯域に渡りチューニング可能な2波長パラメトリック励起光源を開発した。図1にその発振特性を示すが、励起2波長として800nmから1800nmまで同調可能である。この2波長をスキャンし、BNAに対して差周波光混合により最も効率良くTHz波を発生・検出するための位相整合条件を明らかにした。

最終年度(2年目)は、355nm光励起2波長BBO光パラメトリック発振器を励起光源として、有機非線形光学結晶DAST及びBNA結晶を用いた差周波発生により、広帯域周波数可

変性を有するTHz光源を構築した(図2)。さらに、高感度THz光検出のために、周波数アップコンバージョンによる検出を試みた。光源から発生させたTHz光及び、1波長KTP光パラメトリック発振器からの励起光をコリニアにDAST結晶に入射することで、周波数がアップコンバージョンされたシグナル光を検出した。この際、InGaAsフォト検出器を用いることで室温・高速・高感度検出を可能とした。これらの光源と検出技術及び、シリコンプリズムによる全反射を応用することで、超広帯域テラヘルツエヴァネッセント分光システムを構築した。シリコンは屈折率が大きい為、20度近傍の入射角で全反射が生じる。また、全反射の際にP偏光とS偏光間に生じる位相差を利用することで、テラヘルツ光の偏光も制御できる。特に円偏光に対する吸収特性の差異を検出する二色性分光はテラヘルツ帯では極めてチャレンジングなテーマであり、本研究ではこちらにも応用出来るようなシステムを構築するため、シリコンのプリズムのカット角を42度とした。こうする事でテラヘルツ直線偏光を円偏光に変換することが可能となった。実際にエヴァネッセント分光システムを構築し、全反射したテラヘルツ波の検出にも成功した。

最後に水に対するテラヘルツエヴァネッセント分光を試みたが、水試料及びシリコンプリズムによるTHz光吸収が大極めて大きく、有意な透過信号を得る事が困難であった。現在、明確な透過信号を得るためにテラヘルツ光源の更なる高出力化、狭線幅化等に取り組んでいる。

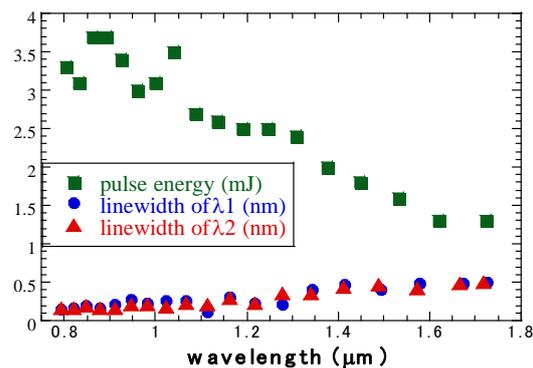


図1. 2波長BBO-OPO発振特性

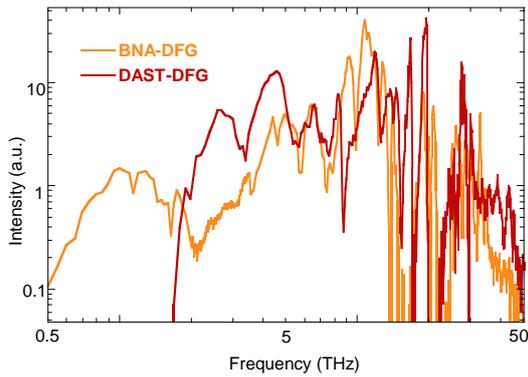


図2. DAST及びBNAによる差周波発生スペクトル

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

- ① Takashi Notake, Yuye Wang, Kouji Nawata, Hiroshi Kawamata, Takeshi Matsukawa, Qi Feng, and Hiroaki Minamide, "Solution growth of high quality organic n-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline crystal for ultrawideband tunable DFG-THz source" *Optical Materials Express* vol. 2, Iss. 2, pp. 119–125 (2012). 査読有り
- ② Takashi Notake, Kouji Nawata, Hiroshi Kawamata, Takeshi Matsukawa, Qi Feng and Hiroaki Minamide, "Development of an ultra-widely tunable DFG-THz source with switching between organic nonlinear crystals pumped with a dual-wavelength BBO optical parametric oscillator" *Optics Express*, vol.20, No.23 pp.25850-25857 (2012). 査読有り
- ③ Y. Wang, T. Notake, M. Tang, K. Nawata, H. Ito and H. Minamide, "Terahertz-wave water concentration and distribution measurement in thin bio tissue based on a novel sample preparation", *Phys. Med. Biol.* 56 4517 (2011). 査読有り
- ④ Ming Tang, Hiroaki Minamide, Yuye Wang, Takashi Notake, Seigo Ohno, Hiromasa Ito, "Tunable terahertz-wave generation from DAST crystal pumped by a monolithic dual-wavelength fiber laser", *Opt. Express* 19 (2), 779-786, (2011). 査読有り

[学会発表] (計15件)

- ① Shigeki Nashima, Kosuke Shibata, Makoto Hosoda, Takuto Yokoe, Kazuaki Inoue, Hideki Hashimoto, Katsuhiko Miyamoto,

Takashi Notake, Hiroaki Minamide, and Hiromasa Ito, "Terahertz radiation characteristics on BNA crystal by terahertz time domain spectroscopy" FTT2012, Nara, Nov.26-30, (2012)

- ② 松川健, 縄田耕二, 野竹孝志, 祁峰, 川俣大志, 南出泰亜, "有機非線形光学結晶の光損傷下での繰り返し周波数及びパルス幅依存性"第73回応用物理学会学術講演会、愛媛大学、2012年9月11-14日
- ③ T. Notake, K. Nawata, et al., "DAST- and BNA-DFG Terahertz-wave generation pumped by a dual-wavelength BBO optical parametric oscillator with independent wavelength-control" CLEO 2012, USA, May 6-11, (2012)
- ④ Kouji Nawata, Takashi Notake, et al., "High-power tunable terahertz-wave source pumped by dual-wavelength injection-seeded optical parametric generator" CLEO 2012, USA, May 6-11, (2012)
- ⑤ 野竹孝志, Hui Dong, Chen Zaichun, Yandong Gong, 南出泰亜¹ "波長可変テラヘルツ波光源を用いた分光ストークス偏光計測システムの開発"第59回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学、2012年3月15-18日
- ⑥ 縄田耕二, 野竹孝志, 川俣大志, 松川健, 祁峰, 南出泰亜, "光注入型2波長励起光源を用いた高出力テラヘルツ波光源の開発"第59回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学、2012年3月15-18日
- ⑦ 野竹孝志, 南出泰亜, "有機非線形結晶 BNA テラヘルツ波差周波光源の新展開" レーザー学会学術講演会第32回年次大会、1.30-2.1,2012 TKP 仙台
- ⑧ 縄田耕二、野竹孝志、川俣大志、松川健、チーフエン、南出泰亜 "注入同期 KTP-OPG 励起光源を用いた広帯域波長可変テラヘルツ波光源"、電子情報通信学会電子デバイス研究会 2011.12.14-15 東北大学
- ⑨ 縄田耕二、野竹孝志、Yuye Wang、川俣大志、南出泰亜、"狭線幅 KTP-OPG 励起光源を用いた高効率・波長可変テラヘルツ波光源の開発"第72回応用物理学会学術講演会、2011.8.29-9.2. 山形大学
- ⑩ T. Notake, Y. Wang, K. Nawata, H. Kawamata, H. Minamide, "Optimization of Broadly Tunable BNA-DFG Terahertz-Wave Source" *Nonlinear Optics*, 17-22 July, 2011, Hawaii

- ⑪ Yuye Wang, **Takashi Notake**, Kouji Nawata, Hiroshi Kawamata, Hiromasa Ito, and Hiroaki Minamide, “Biomedical diagnosis in water concentration of thin biotissues using tunable THz-wave parametric oscillator” Nonlinear Optics, 17-22 July, 2011, Hawaii
- ⑫ Ming Tang, **Takashi Notake**, Yuye Wang, Kouji Nawata, Hiromasa Ito, Hiroaki Minamide, “Intracavity Widely-Tunable Monochromatic Terahertz-Wave Generation with Organic BNA Crystal and KTP-OPO” May 1-6, CLEO 2011, USA
- ⑬ Kouji Nawata, Ming Tang, **Takashi Notake**, Yuye Wang, Hiromasa Ito, Hiroaki Minamide, “Widely tunable narrow-band terahertz-wave source pumped by injection-seeded optical parametric generation”, May 1-6, CLEO 2011, USA
- ⑭ **Takashi Notake**¹, Ming Tang¹, Yuye Wang¹, Kouji Nawata¹, Hiromasa Ito¹, and Hiroaki Minamide¹, “Hybrid Terahertz-Wave Source with Ultrawideband Tunability utilizing Organic DAST and BNA Crystals” May 1-6, CLEO 2011, USA
- ⑮ Yuye Wang, Ming Tang, **Takashi Notake**, Kouji Nawata, Hiromasa Ito and Hiroaki Minamide, “Sensitive water concentration mapping in thin fresh tissues using tunable THz-wave parametric oscillator” SPIE conference, 25 April 2011, USA

6. 研究組織

(1) 研究代表者

野竹 孝志 (NOTAKE TAKASHI)

独立行政法人理化学研究所・テラヘルツ光源
研究チーム・特別研究員

研究者番号：70413995

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし