

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 6 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25286075

研究課題名(和文)可搬型,広帯域波長分散型テラヘルツ分光器の開発

研究課題名(英文)Development of terahertz spectroscopic system with compactness and wide frequency range

研究代表者

縄田 耕二(Nawata, Kouji)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究領域・基礎科学特別研究員

研究者番号：90586405

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では波長分散型テラヘルツ波分光器のために差周波発生を利用した広帯域周波数可変テラヘルツ波光源とテラヘルツ波アップコンバージョン検出を行った。

差周波テラヘルツ波発生におけるテラヘルツ波周波数領域の広帯域化を光注入方式によって図り、0.3THzから4THzまでの広帯域周波数可変テラヘルツ波発生を実現した。分光計測における信号ノイズ比を改善するためにアップコンバージョン検出の高感度化にも取り組んだ。結果として、最小検出テラヘルツ波エネルギーは極低温シリコンボロメータを凌駕する100aJ/pulseまで改善した。

研究成果の概要(英文)：Widely tunable THz-wave generation based on difference frequency generation and THz-wave up-conversion detection were demonstrated. As extending to lower frequency generated by DFG method, injection-seeding technique was applied. THz-wave generation with the tunability from 0.3 THz to 4 THz was demonstrated. To improve the signal/noise ratio for spectroscopic measurement, sensitive up-conversion detection was also demonstrated. As a result, minimum detectable THz-wave energy was 100 aJ/pulse, which was exceeding cryogenically cooled Si-bolometer.

研究分野：非線形光学

キーワード：非線形光学波長変換 差周波発生 近赤外レーザー テラヘルツ波

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ分光計測は、広帯域に測定できるが振幅のみしか検出できないフーリエ変換赤外分光法(FTIR)と周波数帯域は限定的だが位相情報も容易に得られる THz-TDS の二つが主流となっている。特に振幅・位相の両方が簡便に測定できる THz-TDS の広帯域化が盛んに研究されているが、原理的に高強度超短パルス固体レーザーが必須であり、産業展開に向けての小型化の避けられない障害となっている。

2. 研究の目的

差周波発生を利用した広帯域周波数可変テラヘルツ波光源を構築することによってテラヘルツ帯を広帯域に分光測定可能なシステムの開発を目指す。差周波励起光源の開発によるテラヘルツ波周波数可変帯域の広帯域化と非線形アップコンバージョン検出による高感度室温動作テラヘルツ波検出技術の開発によってシグナルノイズ比の高い分光計測システムの構築を目指す。

3. 研究の方法

これまで我々は非線形光学波長変換技術を駆使し、有機非線形光学結晶 DAST(4-dimethylamino-*N*'-methyl-4'-stilbazolium tosylate) や BNA(*N*-benzyl 2-methyl-4-nitroaniline)を用いて、持ち運びはできないが高効率・広帯域周波数可変テラヘルツ波発生および検出を実現してきた。また周波数領域は限定的ながらテラヘルツ波位相検出法も提案・実現しておりテラヘルツ波応用へ向けて発生・検出両面から貢献してきた。我々が独自に培い世界をリードしてきた非線形光学結晶の周波数可変テラヘルツ波光源技術と融合させることによって広帯域テラヘルツ波分光システムを実現する。

4. 研究成果

有機非線形光学結晶を用いた差周波テラヘルツ波発生におけるテラヘルツ波周波数領域の広帯域化を図り、特に低周波領域において、これまでの最小周波数(最長波長)を約1桁改善し、0.3THz からテラヘルツ波発生を実現した。この成果によって広帯域なテラヘルツ波周波数分光特性の測定が可能となった。同一光学系でメカニカルな調整を必要としない周波数可変性を実現しており、ユーザビリティの高いシステムと考えている。また最大周波数は 4THz まで連続的に周波数可変であり、結果としてテラヘルツ帯を網羅する3オクターブ以上に渡る広帯域分光測定可

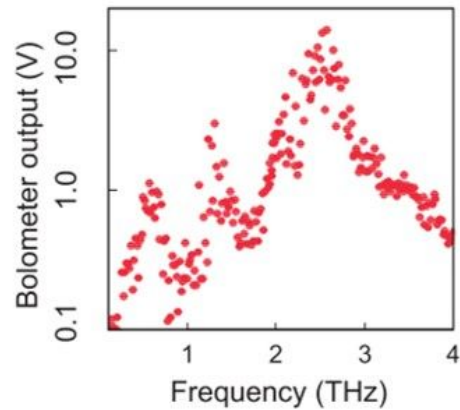


図 1. 周波数可変テラヘルツ波発生例

能なシステムの構築に成功した(図 1)。周波数可変帯域は差周波励起光源の可変帯域で現在は決まっており、有機非線形光学結晶の位相整合の問題によるものではないため、励起光源の改善により高周波領域をさらに開拓することも可能であることが分かった。

高感度テラヘルツ波検出技術として、非線形光学効果を用いた室温動作高感度コヒーレントテラヘルツ波検出について研究を行った。実用的な非線形光学効果を用いた高感度コヒーレントテラヘルツ波検出技術を開発するために疑似位相整合デバイスを用いて位相整合条件を積極的に制御し、最適なテラヘルツ波検出光学系の構築について取り組んできた。原理検証として周期分極反転二オプ酸リチウム結晶を用いて 1.6THz のアップコンバージョン検出を行った(図 2)。結果としてテラヘルツ波入力エネルギーに比例したアップコンバージョン信号光強度が得られた。またテラヘルツ波入力エネルギーと信号光強度の関係は励起光エネルギーによらず線形であることが分かった。これは差周波発生の原理でテラヘルツ波 光変換が起きていることを示している。結晶長 15mm の分極反転素子を用いて実験した結果、最小テラヘルツ波検出エネルギーは約 100fJ であった。この結果を踏まえて検出感度の高感度化にも取り組んだ。具体的には差周波発生の式において2乗の効果を発揮する結晶長を 15mm から 40mm へと伸ばした。その結果、最小検出テラヘルツ波エネルギーは 100aJ/pulse まで改善し、最小検出可能エネルギーが約3桁向上した。この最低検出エネルギーは極低温シリコンボロメータを凌駕する検出エネルギーを達成した。

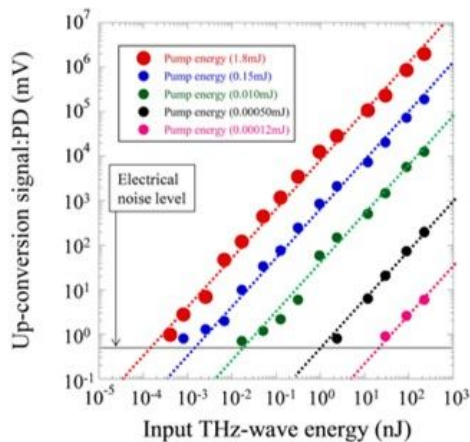


図 2. テラヘルツ波アップコンバージョン検出例

本研究期間を通して成果の一部は学術論文発表だけでなく、4 件の特許出願に至った。本研究によって得られた技術および着想の新規性が特許化されることによって、日本の科学技術発展に寄与できたと言える。

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 16 件)

- 査読有 Yu Tokizane*, Kouji Nawata, Zhengli Han, Mio Koyama, Takashi Notake, Yuma Takida, and Hiroaki Minamide "Tunable terahertz waves from 4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium tosylate pumped with dual-wavelength injection-seeded optical parametric generation" *Applied Physics Express* 10, 022101 (2017)
- 査読有 Y. Takida, K. Nawata, S. Suzuki, M. Asada, and H. Minamide, "Terahertz-wave differential detection based on simultaneous dual-wavelength up-conversion," *AIP Advances*, Vol. 7, Issue 3, 035020 (2017).
- 査読有 Y. Takida, K. Nawata, S. Suzuki, M. Asada, and H. Minamide, "Nonlinear optical detection of terahertz-wave radiation from resonant tunneling diodes," *Opt. Express*, Vol. 25, No. 5, pp. 5389-5396 (2017).
- 査読有 Y. Takida, J. Shikata, K. Nawata, Y. Tokizane, Z. Han, M. Koyama, T. Notake, S. Hayashi, and H. Minamide, "THz-wave parametric gain of stimulated polariton scattering," *Phys. Rev. A*, Vol. 93, Issue 4, 043836 (Apr. 2016).
- 査読有 S. Hayashi, K. Nawata, Y. Takida, Y. Tokizane, K. Kawase, H. Minamide, High-Brightness Continuously Tunable Narrowband Subterahertz Wave Generation,

IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology. 6 (2016) 858–861. doi:10.1109/TTHZ.2016.2611939.

- 査読有 K. Nawata, T. Notake, H. Ishizuki, F. Qi, Y. Takida, S. Fan, S. Hayashi, T. Taira, and H. Minamide, "Effective terahertz-to-near-infrared photon conversion in slant-stripe-type periodically poled LiNbO₃," *Applied Physics Letters* 104, 091125 (2014).
- 査読有 Shuzhen Fan, Feng Qi, Takashi Notake, Kouji Nawata, Yuma Takida, Takeshi Matsukawa, and Hiroaki Minamide, "Diffraction-limited real-time terahertz imaging by optical frequency up-conversion in a DAST crystal," *Optics Express*, Vol.23, No.6, pp.7611-7618, (16 Mar 2015), DOI:10.1364/OE.23.007611 (selected by *Virtual Journal for Biomedical Optics*, Vol. , Issue , 2015)
- 査読有 F. Qi, S. Fan, T. Notake, K. Nawata, T. Matsukawa, Y. Takida, and H. Minamide, "10 aJ-level sensing of nanosecond pulse below 10 THz by frequency upconversion detection via DAST crystal: more than a 4 K bolometer," *Opt. Lett.* 39, 1294–1297 (2014).
- 査読有 F. Qi, S. Fan, T. Notake, K. Nawata, T. Matsukawa, Y. Takida, and H. Minamide, "An ultra-broadband frequency-domain terahertz measurement system based on frequency conversion via DAST crystal with an optimized phase-matching condition," *Laser Phys. Lett.* 11, 085403 (2014).
- 査読有 F. Qi, K. Nawata, S. Hayashi, T. Notake, T. Matsukawa, and H. Minamide, "Bridging a few terahertz to tens of terahertz: Inspection on a cost-effective, room-temperature operated measurement system based on frequency conversion via 4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium tosylate crystal," *Applied Physics Letters* 104, 031110 (2014).
- 査読有 H. Minamide, S. Hayashi, K. Nawata, T. Taira, J. Shikata, and K. Kawase, "Kilowatt-peak Terahertz-wave Generation and Sub-femtojoule Terahertz-wave Pulse Detection Based on Nonlinear Optical Wavelength-conversion at Room Temperature," *J Infrared Milli Terahz Waves* 35, 25–37 (2014).
- 査読有 T. Matsukawa, T. Notake, K. Nawata, S. Inada, S. Okada, and H. Minamide, "Terahertz-wave generation from 4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium p-bromobenzenesulfonate crystal: Effect of halogen substitution in a counter benzenesulfonate of stilbazolium derivatives," *Optical Materials* 36, 1995–1999 (2014).

13. 査読有 S. Hayashi, K. Nawata, T. Taira, J. Shikata, K. Kawase, and H. Minamide, "Ultrabright continuously tunable terahertz-wave generation at room temperature," Sci. Rep. 4, (2014).
14. 査読有 S. Fan, F. Qi, T. Notake, K. Nawata, T. Matsukawa, Y. Takida, and H. Minamide, "Real-time terahertz wave imaging by nonlinear optical frequency up-conversion in a 4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium tosylate crystal," Applied Physics Letters 104, 101106 (2014).
15. 査読有 瀧田 佑馬, 柴 直孝, 野竹 孝志, 縄田 耕二, 時実 悠, 林 伸一郎, 廣本 宣久, 南出 泰垂, "高出力テラヘルツ波パラメトリック光源を用いたパイロ検出器の感度較正法の確立に向けて,"電気通信情報学会技術研究報告(信学技報), 第114巻第387号, pp. 33-37(2014年).
16. 査読有 T. Matsukawa, K. Nawata, T. Notake, F. Qi, H. Kawamata, H. Minamide, Pump-beam-induced optical damage depended on repetition frequency and pulse width in 4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium tosylate crystal, Applied Physics Letters. 103 (2013)

[学会発表](計 6 件)

1. (Invited) Kouji Nawata, Hiroaki Minamide, "Nonlinear Optical Wavelength-Conversion using periodically poled LiNbO3 for Sensitive Terahertz-Wave Detection ", B43, EMN Meeting on Terahertz 2016, May 17 2016, San Sebastian, Spain.
2. [Invited] Kouji Nawata and Hiroaki Minamide, "Sensitive Terahertz-wave Detection using Optical Nonlinear Wavelength-conversion for a Stand-off Sensing" Tera-MIR 2015, NATO ARW on THz Diagnostics of CBRN effects and Detection of Explosives & CBRN, Izmir, Turkey (Nov. 4th, 2015). [Oral]
3. (Invited) Kouji Nawata, Shin'ichiro Hayashi, Hiroaki Minamide, "Nonlinear optical frequency up-conversion broadening terahertz horizons in sensitive detection" , SPIE DSS2015, Terahertz Physics, Devices, and Systems IX: Advanced Applications in Industry and Defense, Baltimore Convention Center, Baltimore, Maryland, USA, 23 APRIL 2015, [Oral]
4. K. Nawata, T. Notake, H. Ishizuki, F. Qi, Y. Takida, S. Fan, S. Hayashi, T. Taira, and H. Minamide, "Effective THz Detection Using a Periodically Poled LiNbO₃", ALPS6-2, ALPS2014, Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan, April 23, 2014
5. Kouji Nawata, Takashi Notake, Hideki Ishizuki, Feng Qi, Yuma Takida, Shuzhen Fan, Shin'ichiro Hayashi, Takunori Taira, Hiroaki Minamide, "Sensitive THz-wave detector using a quasi-phase-matched LiNbO₃ at room temperature", 9136-40, Photonics Europe, SQUARE Brussels Meeting Centre, Brussels, Belgium, 16 April 2014
6. Kouji Nawata, Takashi Notake, Hideki Ishizuki, Yu Tokizane, Yuma Takida, Shin'Ichiro Hayashi, Takunori Taira and Hiroaki Minamide, "Efficient wavelength-conversion from terahertz to near infrared using a slant-stripe-type periodically poled LiNbO₃", Poster #5, San Diego, California, USA, 9 Mar 2015, Poster.
7. 縄田耕二, 野竹孝志, 石月秀貴, 祁峰, 瀧田佑馬, 范書振, 林伸一郎, 時実悠, 平等拓範, 南出泰垂, "斜周期分極反転素子を用いたテラヘルツセンサーの高感度化", 19a-C6-13, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学札幌キャンパス, 2014年9月19日
8. 縄田耕二, 野竹孝志, 石月秀貴, 祁峰, 瀧田佑馬, 范書振, 林伸一郎, 平等拓範, 南出泰垂, "斜周期分極反転素子を用いた直交入射配置によるテラヘルツ波検出", 18p-E17-5, 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学相模原キャン

ンパス, 2014年3月17-20日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 4 件)

名称: テラヘルツ波検出装置と方法
発明者: 縄田耕二、南出泰亜、伊藤弘昌、林伸一郎
権利者: 理化学研究所
種類: 特許権
番号: 特願 2013-81055
出願年月日: H25.4.9
国内外の別: 国内

名称: Terahertz Wave Detection Device and Method
発明者: Kouji Nawata, Hiroaki Minamide, Hiromasa Ito, Shinichiro Hayashi
権利者: 理化学研究所
種類: 特許権
Patent No. US 9,040,918 B2
Date of Patent May 26, 2015
国内外の別: 国外(US)

名称: 光応答計測装置および光応答計測方法
発明者: 縄田耕二、南出泰亜、ファンシュウチェン、チーフオン、伊藤弘昌
権利者: 理化学研究所
種類: 特許権
番号: 2014-207559
出願年月日: H26.10.8
国内外の別: 国内

名称: テラヘルツ波生成装置、光パラメトリック増幅器、テラヘルツ波検出器、および非線形光学素子
発明者: 縄田耕二、時実悠、南出泰亜
権利者: 理化学研究所
種類: 特許権
番号: 2016-192374
出願年月日: 2016/9/30
国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.riken.go.jp/lab-www/tera/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

縄田耕二 (Nawata Kouji)
理化学研究所光量子工学研究領域テラヘルツ光源研究チーム・基礎科学特別研究員
研究者番号: 90586405

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

南出泰亜 (Minamide Hiroaki)
理化学研究所光量子工学研究領域テラヘルツ光源研究チーム・リームリーダー
研究者番号: 10322687

(4) 研究協力者

()