

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2007～2009

課題番号：19206009

研究課題名（和文）1-100THz 超広帯域・擬似 CW 単色テラヘルツ波源システムの開拓

研究課題名（英文）Ultra wide-band (1-100THz), quasi-CW monochromatic THz-wave source system

研究代表者

伊藤 弘昌 (ITO HIROMASA)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：20006274

研究成果の概要（和文）：非線形光学効果を用い、超広帯域波長可変単色テラヘルツ波源システムの開発を行った。有機非線形光学結晶 DAST の広帯域に跨る未知の物性値解明に伴い、各発生周波数における最適位相整合条件を算出し、瞬時に最適条件を追尾可能な高機能励起 2 波長光源システムを完成させた。これにより、高効率・広帯域テラヘルツ波発生が可能となった。さらに、擬似 CW テラヘルツ波発生の為、高繰返し励起 2 波長の発生にも成功した。

研究成果の概要（英文）：We report on the demonstration of an effective and widely tunable terahertz (THz)-wave generation using difference frequency generation (DFG) in an organic 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate (DAST) by optimization of the pumping wavelength. We calculated the Type 0 phase-matching condition of DAST-DFG THz-wave generation over an ultrawide band. To satisfy phase-matching conditions over the whole THz-wave region, two pump wavelengths were controlled independently. A comparison of the calculated and experimental results established the optimum phase-matching condition of DAST-DFG.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	23,700,000	7,110,000	30,810,000
2008 年度	9,400,000	2,820,000	12,220,000
2009 年度	5,000,000	1,500,000	6,500,000
年度			
年度			
総計	38,100,000	11,430,000	49,530,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理・工学基礎、応用光学・量子光工学

キーワード：テラヘルツ赤外材料・素子、量子エレクトロニクス、光源技術、高性能レーザー

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ電磁波領域とは広義で一般的に数百 GHz～数十 THz の範囲を示すことが多く、光波やマイクロ波に比べ発生自体が難しく光源開発が大幅に遅れていた。しかし、こ

の領域は分子振動や分子相互作用、格子振動などを含む領域であり、現在では、分子間の大振幅振動観測にテラヘルツ波を用いた次世代生命科学分野の分子レベル研究、郵便物内の麻薬検査や空港内での危険物検査とい

ったセキュリティに関する研究など、基礎科学分野から応用・産業分野と非常に幅広くテラヘルツ波利用が内外で検討されるようになって来た。このようにテラヘルツ波の有用性が認められ、社会的に求められる多くの応用技術が邁進する中、これに応える為の、独創的・高性能・簡便な光源開発は非常に重要な役割を果たす。従来多く用いられてきたテラヘルツ波光源は、超短パルス光発生によるモノサイクルブロードバンドテラヘルツ波がほとんどであり、周波数当たりの出力は非常に小さい。また、テラヘルツ量子カスケードレーザー(QCL)の研究が進められているが、常温発生には至っておらず周波数帯域にも制限がある。これらの課題を一瞬にして解決できる独創的且つ先駆的な光源が、本課題で実現を目指した、超広帯域・擬似CWテラヘルツ波源である。発生周波数帯域が1~100THzという超広帯域をカバーしつつ瞬時に周波数同調できる frequency-agile 性能も兼ね備えているのが、本システムの特徴である。さらに、超高繰返し動作の擬似CW波源が実現出来れば、微小信号測定やイメージングシステムに最適な光源となる。超広帯域にわたり周波数敏捷性を有しながら高安定な擬似CWテラヘルツ波源はこれまでに無く、生命科学や医療応用だけでなく新たな研究分野創出や異分野融合等の多角的応用研究への『核』となる光源開発である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、非線形光学効果を用いた超広帯域(1~100THz)・高繰返しテラヘルツ波の発生およびそのシステム化を行う事である。有機非線形光学結晶 DAST および BNA などの各種非線形光学結晶をもちいて、各発生周波数における最適位相整合条件の算出により、高効率広帯域での発生を目指す。この為の基本技術として、独立制御2波長励起光源を構築し、最適励起2波長を発生周波数ごとに合わせる事で、位相整合条件を常時追尾する事が可能となる。さらに、擬似CWテラヘルツ波発生用の高繰返し励起光源の開発も目指す。

3. 研究の方法

我々はこれまでに有機非線形光学結晶 DAST: 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate を用いた差周波発生(difference frequency generation: DFG)により世界最高峰の単色テラヘルツ波源を開発してきた。差周波発生とは、異なる二つの周波数を結晶に入射させ、その差の周波数成分を取り出す技術を言う。有機非線形光学結晶 DAST は、これまでの強誘電体や半導体材料に比べ、非線形光学係数が約100倍と極めて高く高効率なテラヘルツ発生が実現できる

ことを世界に先駆けて明らかにしてきた。DAST-DFG 発生においては非常に高効率でのテラヘルツ波発生が可能であるが、出力スペクトルにおいて多くの構造が見られ、DAST 結晶のポテンシャルを活かしきれておらず、大きな課題であった。原因としては、屈折率の異常分散による位相不整合の影響と、DAST のフォノンモードによる吸収の二つが考えられる。

位相不整合の問題に対しては、理論計算と実験の両側面から広帯域発生の為の各発生周波数における最適位相整合条件を見出す事で解決を図る。これまで、未知数であった広帯域にわたる結晶の屈折率を算出する事が非常に重要である。また、瞬時に周波数を同調できる高性能励起光源の開発を行い、最適位相整合条件を常時追尾しながら、高効率・広帯域テラヘルツ波発生を目指す。

結晶のフォノンモードに起因する構造は、DAST と他の有機非線形光学結晶を組み合わせる事で解決可能である。DAST 結晶と同等の大きさの光学非線形性を有し、かつ異なるフォノンモードを有する新規材料を開発しなければならない。本研究グループでは、この要求を満足するべく代表的な有機非線形光学結晶である 2-methyl-4-nitroaniline (MNA) の N 置換誘導体を開発してきた。なかでも N-benzyl MNA (BNA) は DAST 結晶に匹敵する光学非線形性を有し、良好な結晶性も伴って、テラヘルツ波発生にも極めて有用な材料であることが明らかとなっている。

本課題においては以上の実績を踏まえつつ明らかになっている課題を解決し、DAST および新規有機非線形光学結晶 BNA などの各種非線形結晶を用い、世界初超広帯域・擬似CW単色テラヘルツ波源システムの開発を目指す。

4. 研究成果

高効率で広帯域なテラヘルツ波発生の為には、各発生周波数での最適位相整合条件を満たす必要がある。しかし、広帯域にわたる結晶の屈折率が未知である事が多く、結晶の潜在能力を活かしきれていない場合がほとんどである。FTIR により測定した吸収係数を元にローレンツモデルにより決定し、最終的に複素屈折率の算出を行った。さらに、コヒ

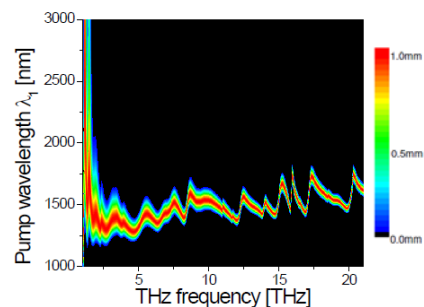


図1 DAST-DFG コヒーレンス長マッピング

一レンス長計算によりテラヘルツ波発生に最適な励起 2 波長を見積もる事に成功した。DAST での一例を図 1 に示す。

また、新規有機非線形光学結晶 BNA は、DAST 結晶のフォノンモードによる発生周波数の抜けを補うために用いるが、DAST に比べ耐損傷閾値が低いという課題があった。その為、耐損傷閾値の向上を目指し、これまでの融液からの垂直ブリッジマン法による単結晶育成に加え、メタノールを用いた過飽和溶液からの自然核発生・単結晶成長にも成功した。X 線回折による配向や完全性の評価を行い良質な結晶を得る事が出来た。溶液成長による BNA 結晶において、レーザーに対する耐損傷閾値は、従来法に比べ約 20%向上が達成された。

次に、高効率で広帯域な出力を得るための基本技術として、追尾型 2 波長独立ガルバノ制御励起光源のシステム構築を行った。2 つの KTiOPO4(KTP)結晶をガルバノスキャナにマウントし反射配置型 OPO(optical parametric oscillator)構成する事により、ウォークオフ角・ビームパスずれといった機械的制御に伴う課題をクリアした。2 つの結晶から独立 2 波長を任意・自由にしかも瞬時に発生できる波長 agile 選択性を有する為、テラヘルツ周波数帯域によって異なる位相整合条件を満たす 2 波長を高速に同調・追尾することが可能となる。開発した広帯域テラヘルツ波システムの概略を図 2 に示す。

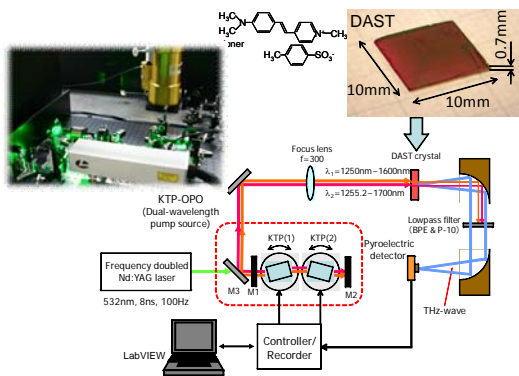


図 2 超広帯域波長可変テラヘルツ光源

このシステムを用いて、実際にテラヘルツ波を発生させ励起波長をパラメータにテラヘルツ波出力のマッピングを行った。これにより、未知の DAST・BNA 結晶の広帯域屈折率分散特性を実験的に決定し、最適励起 2 波長のルックアップテーブルを初めて完成させた。これにより、DAST 結晶および BNA 結晶におけるテラヘルツ波発生出力は従来の一桁以上の高出力化に成功した(図 3 にテラヘルツパワースペクトルの一例を示す)。従来は、極低温検出器でしか測定が出来なかったが、本課題で開発した光源では、市販の常温検出器にてパワー測定が可能となった。

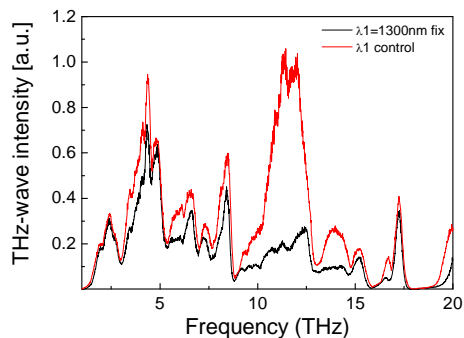


図 3 DAST-DFG テラヘルツ波パワースペクトル

DAST-DFG においては、同調範囲 1.5~40THz を達成し、2.3μJ@23THz という DAST 結晶において世界最高出力を実現している。また、BNA-DFG においては、0.1~20THz という広帯域差周波発生を世界で初めて実現した。以上から、未知であった結晶の物性値の同定を振動シモデルにより行い、さらに追尾型 2 波長独立制御励起光源により、最適位相整合条件の波長同調法をシステムとして確立できた。これにより、物性値が未知な結晶を用いても最適位相整合条件の算出が可能となり、物性研究にも広がる大きな成果の一つと言える。また、当初はテラヘルツ波発生範囲 1-100THz を目標にしていたが、今回の課題では DAST と BNA を相補的に用いる事により、0.1-40THz の発生に成功した。巨大分子の大振幅振動など生命関連物質の指紋振動領域に重要な、低周波側において一桁以上の広帯域発生を実現できた。また、擬似 CW テラヘルツ波発生を見据えた、高繰返し冷氣 2 波長光源の開発も合わせて行い、sub-MHz 繰返し動作において励起 2 波長の発生を確認する事に成功した。この繰返し動作は従来の 1000 倍の高速性能であり、高 S/N・高スループットに大きな期待が出来る。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 12 件)

1. A. Hamano, S. Ohno, H. Minamide, H. Ito, and Y. Usuki, "High Resolution Imaging of electrical Properties of a 2-Inch-Diameter Gallium Nitride Wafer Using Frequency-Agile Terahertz Waves", Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 49, pp022402-1-022402-5, 2010.
2. K. Miyamoto, S. Ohno, M. Fujiwara, H. Minamide, H. Hashimoto, H. Ito, "Optimized terahertz-wave generation using BNA-DFG", Opt. Express, 査読有, 17, pp14832-14838, 2009.
3. S. Nagano, A.Syouji, R. Shimizu, K. Suizu, H. Ito, K. Edamatsu, "Generation of Cross-Polarized Photon Pairs via Type-II Third-Order Quasi Phase Matched

- Parametric Down-Conversion", Japan Journal of Applied Physics, 査読有, 48, pp050205-1-050205-3, 2009.
4. H. Minamide, T. Ikari, H. Ito, "Frequency-agile terahertz-wave parametric oscillator in a ring-cavity configuration", Review of Scientific Instruments, 査読有, Vol.80, No.12. pp123104-1-123104-5, 2009.
 5. K. Miyamoto, H. Minamide, M. Fujiwara, H. Hashimoto and H. Ito, "Widely tunable terahertz-wave generation using an N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline crystal," Opt. Lett., 査読有, 33, pp252-254, 2008.
 6. K. M. Abedin, J. Shikata, K. Miyamoto, and H. Ito, "Change of molecular damping during solidification and melting in scattering samples studied by Raman spectroscopy," Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 47, pp7936-7940, 2008.
 7. H. Ito, K. Suizu, T. Yamashita, A. Nawahara, and T. Sato, "Random frequency accessible broad tunable terahertz-wave source using phase-matched 4-dimethylamino -N-methyl -4-stilbazolium tosylate crystal," Jpn J. Appl. Phys., 査読有, 46, pp7321-7324, 2007.
 8. K. Suizu, K. Miyamoto, T. Yamashita and H. Ito, "High-power terahertz-wave generation using DAST crystal and detection using mid-infrared power meter," Opt. Lett., 査読有, 32, pp2885-2887, 2007.
 9. K. Miyamoto, H. Ito, "Wavelength-agile mid-infrared (5-10 μ m) generation using a galvano-controlled KTiOPO4 optical parametric oscillator," Opt. Lett., 査読有, 32, pp274-276, 2007.
- [学会発表] (計 34 件)
1. H. Ito, "Challenges for frequency-agile THz-wave source and detection", 2nd International workshop on Terahertz Technology, 2009年12月1日, Osaka, Japan.
 2. H. Ito, H. Minamide, "Frequency-agile THz-wave generation and detection using nonlinear optical interactions", The 10th Chitose International Forum on Photonic Science and Technology (CIF-10), 2009年11月13日, Chitose, Hokkaido, Japan.
 3. H. Ito, H. Minamide, "Frequency-agile Mid-IR to THz-wave Source and its Applications", Middle Infrared Coherent Sources MICS'2009, 2009年6月10日, Trouville, France.
 4. H. Ito, " Ultra-Wide THz-Wave Generation by DAST and BNA", C Conference on Lasers and Electro Optics 2009 LEO/IQEC 2009, 2009年6月4日, Baltimore, USA.
 5. K. Miyamoto, S. Ohno, M. Fujiwara, H. Minamide, H. Hashimoto, H. Ito, "Optimum Phase-Matched Terahertz-Wave Generation of BNA-DFG", Conference on Lasers and Electro Optics 2009, CLEO/IQEC 2009, 2009年6月4日, Baltimore, USA.
 6. T. Ikari, H. Ito, D. H. Wu, "Pump Beam Recycling for an Enhancement of the Output Power of Terahertz-Wave Parametric Oscillator", Conference on Lasers and Electro Optics 2009, CLEO/IQEC 2009, 2009年6月2日, Baltimore, USA.
 7. Y. H. Avetisyan, A. Hakhoumian, A. Makaryan, T. Poghosyan, G. Torosyan, R. Beigang, H. Minamide, H. Ito, "Undistorted Terahertz Pulses Propagation in Slightly Curved Parallel Plate Waveguide", Conference on Lasers and Electro Optics 2009, CLEO/IQEC 2009, 2009年6月2日, Baltimore, USA.
 8. H. Minamide, J. Zhang, R. Guo, S. Ohno, K. Miyamoto, H. Ito, "Terahertz-Wave Detection Using an Organic DAST Crystal Covering Ultra-Wide Frequency-Range at Room Temperature", Conference on Lasers and Electro Optics 2009, CLEO/IQEC 2009, 2009年6月1日, Baltimore, USA.
 9. H. Ito, S. Ohno, K. Miyamoto and H. Minamide, "Ultra-broadband, frequency-agile THz-wave generator and its application to carrier density mapping of GaN wafers", Optical Terahertz Science and Technology 2009 Meeting, 2009年3月9日, Santa Barbara, USA.
 10. M. Ashida, R. Akai, H. Shimosato, I. Katayama, K. Miyamoto and H. Ito, "Ultra-broadband time domain spectroscopy from sub-THz to near- infrared region" Optical Terahertz Science and Technology 2009 Meeting, 2009年3月8日, Santa Barbara, USA.
 11. K. Miyamoto, M. Fujiwara, H. Minamide, H. Hashimoto, and H. Ito "Bridgman method grown BNA crystal for wideband THz-wave generation", The 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter, 2008年7月9日, Lyon, France.
 12. M. Ashida, R. Akai, H. Shimosato, I. Katayama, K. Miyamoto, and H. Ito "Electric Field Detection of Near-Infrared Light Using Photoconductive Sampling", XVI International Conference on Ultrafast Phenomena Topical Meeting (UP 2008), 2008年6月10日, Stresa, Italy.
 13. K. Miyamoto, H. Minamide, M. Fujiwara, H. Hashimoto, and H. Ito "0.1-15THz Generation Using BNA

- (N-Benzyl-2-Methyl-4-Nitroaniline) Crystal", Conference on Lasers and Electro Optics 2008, 2008年5月6日, San Jose McEnery Convention Center, San Jose, California, USA.
14. M. Ashida, R. Akai, H. Shimosato, I. Katayama, T. Itoh, K. Miyamoto and H. Ito "Ultrabroadband THz Field Detection beyond 170THz with a Photoconductive Antenna", Conference on Lasers and Electro Optics 2008 (CLEO 2008), 2008年5月6日, San Jose McEnery Convention Center, San Jose, California, USA.
 15. K Miyamoto, H Minamide, H Ito, "A wavelength-agile mid-IR (5-10 μ m) ZGP-OPO", APLS2008, 2008年1月31日, Nagoya, Japan.
 16. H Ito, K. Miyamoto, H. Minamide, "Ultra-Broadband, Frequency-Agile THz-Wave Generator and Its Applications", ASSP 2008, 2008年1月31日, Nara, Japan.
 17. K. Miyamoto, H. Minamide, M. Fujiwara, H. Hashimoto, H. Ito, "Coherent tunable monochromatic Terahertz-wave generation using N-Benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) crystal" Photonics West 2008, 2008年1月22日, San Jose, USA.
 18. K. Miyamoto, A. Nawahara, T. Yamashita, H. Ito, "Phase-matched DAST-DFG THz-wave generation using independently controllable dual wavelength light source", (IRMMW-THz 2007), 2007年9月5日, Cardiff, UK.
 19. T. Yamashita, A. Nawahara, K. Miyamoto, H. Ito, "Frequency-agile 1-20 THz-wave generation using DAST crystal", CLEO / Pacciffic Rim 2007, 2007年8月29日, Seoul, Korea.

[図書] (計3件)

1. 伊藤弘昌, 朝倉書店, 「フォトニクス基礎 (伊藤弘昌編 電気・電子工学基礎シリーズ 10)」, 2009, 215 ページ
2. 南出泰亜, NTGコーポレーション, 「テラヘルツ技術総覧 (テラヘルツテクノロジーフォーラム編)」, 2007, 151-158 ページ.
3. 橋本秀樹, NTGコーポレーション, 「テラヘルツ技術総覧 (テラヘルツテクノロジーフォーラム編)」, 2007, 123-125 ページ.

[その他]
ホームページ

<http://www.riken.go.jp/lab-www/tera/>
<http://www.sci.osaka-cu.ac.jp/phys/PBM/index-j.html>

テラヘルツデータベース
<http://www.thzdb.org/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

伊藤 弘昌 (ITO HIROMASA)
東北大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：20006274

(2) 研究分担者

宮本 克彦 (MIYAMOTO KATSUHIKO)
千葉大学・大学院融合科学研究科・助教
研究者番号：20375158

南出 泰亜 (MINAMIDE HIROAKI)
独立行政法人 理化学研究所・テラヘルツ光
研究プログラム・研究員
研究者番号：10322687

橋本 秀樹 (HASHIMOTO HIDEKI)
大阪市立大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：50222211

(3) 連携研究者 なし