

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 30 日現在

機関番号：12501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2011

課題番号：22760034

研究課題名（和文）新規非線形結晶 BNA を用いた

未踏テラヘルツ波領域(10～30 $\mu\text{m}$ )の開拓と応用研究課題名（英文）Wideband THz-wave (10-30 $\mu\text{m}$ ) source system using by BNA crystal

研究代表者

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

研究成果の概要（和文）：

新規有機非線形光学結晶 BNA(N-benzyl 2-methyl-4-nitroaniline)のテラヘルツ波帯での物性値を明らかにすることで、これまで発生が難しかった未踏テラヘルツ領域(10～30 $\mu\text{m}$ )での高効率な発生を実現した。各発生周波数において、最適位相整合条件を算出する事により 11.6THz において従来の 10 倍の高出力を得る事に成功した。

研究成果の概要（英文）：

High efficiency, widely tunable terahertz (THz) generation from an organic N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) crystal was demonstrated by optimizing the pump dual-wavelengths. We calculated the (wideband) refractive index and coherence length mapping of BNA to establish the optimum phase-matching condition of the DFG configuration.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

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

## 1. 研究開始当初の背景

波長 10～30 $\mu\text{m}$  帯においては適切な非線形光学結晶が存在しない事から発生自体が難しい領域となり取り残された波長域となっていた。

近年、無機結晶であるニオブ酸リチウム結晶(LiNbO<sub>3</sub>)やリン化ガリウム結晶(GaP)、有機結晶である 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate (DAST)結晶を用いたテラヘルツ波光源の開発がなされており、多くの応用へと展開されている。

研究代表者はこれまでに、材料に有機非線形光学結晶 DAST 結晶を用いる事で 10～30 $\mu\text{m}$  帯テラヘルツ波発生とその応用研究を行ってきたが、テラヘルツ波領域において DAST 結晶には化学構造に由来する様々な吸収やフォノンモードが存在し、スペクトル構造(発生波長の抜けによりパワースペクトルが平坦でない)をもつため高出力でかつ連続的に 10～30 $\mu\text{m}$  帯テラヘルツ波を発生させることができなかった。そこで、着目したのが新しい有機非線形光学材料

BNA(N-benzyl 2-methyl-4-nitroaniline)結晶である。BNA結晶は、DAST結晶とは異なるフォノンモードを有しており、DAST結晶に比べて連続的に波長の抜けなく、かつ、出力のむらなく10~30 $\mu\text{m}$ 帯テラヘルツ波を網羅することが期待できる。

## 2. 研究の目的

本課題では、BNA結晶のテラヘルツ波帯での屈折率など未知の物性値を実験的に決定するとともに、BNA結晶の潜在能力(高非線形性・低分散・高光損傷)を極限まで活用し、未踏波長域10~30 $\mu\text{m}$ において波長抜けや出力低減のない究極の高出力広帯域テラヘルツパルス光源を創出する事を、目的としている。

## 3. 研究の方法

新規非線形光学 BNA 結晶を用いて、高効率・広帯域テラヘルツ波発生を実現させるために、以下の項目について実験検証を行った。

- 1) 新規非線形光学 BNA 結晶のテラヘルツ波帯における光学特性解明
- 2) テラヘルツ波発生に伴う BNA 結晶の光学特性の同定とテラヘルツ波の高効率発生

## 4. 研究成果

- 1) 新規非線形光学 BNA 結晶のテラヘルツ波帯における光学特性解明

フーリエ変換赤外分光装置(FTIR)よりBNA結晶のテラヘルツ波帯における吸収係数を算出した。その結果を図1に示す。

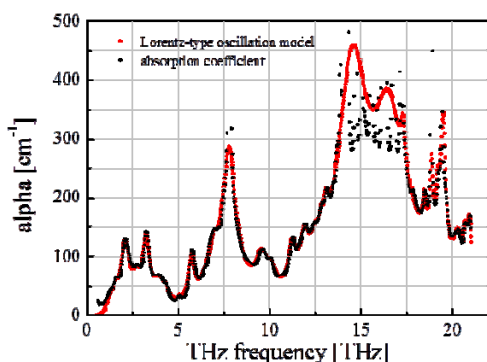


図1 新規非線形光学 BNA 結晶のテラヘルツ波帯域における吸収係数

次に、テラヘルツ波帯におけるBNA結晶の屈折率算出した。図1の実測値を元に、BNA結晶の各周波数における吸収係数からローレンツモデルによるフィッティングを行った結果が図1の赤線である。このフィッティング結果からテラヘルツ波帯での屈折率を算出した(図2)。

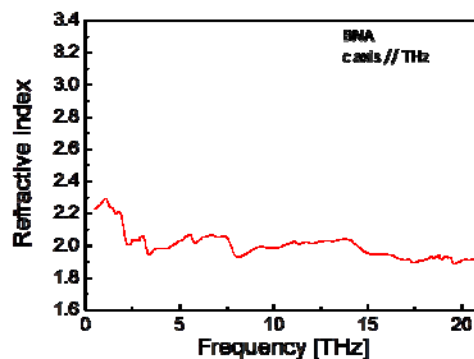


図2 テラヘルツ波帯域におけるBNA結晶の屈折率

図2からわかるとおり、テラヘルツ波帯域においてBNA結晶は大きな分散は確認できず、広帯域にわたりほぼ一定の値を示している事が確認できた。光波帯でのBNA結晶の屈折率が1.9程度であるため、広帯域テラヘルツ波発生が可能な事を示している。

次に、BNA結晶を用いて差周波発生(Difference Frequency Generation)を行う予備段階として、最適位相整合条件の算出が必要不可欠である。このため、図2に示すテラヘルツ波帯におけるBNA結晶の屈折率を用いてコヒーレンス長を

$$L_c = \frac{\pi}{\Delta k} = \left( \frac{2n_1}{\lambda_1} - \frac{2n_2}{\lambda_2} - \frac{2n_{THz}}{\lambda_{THz}} \right)^{-1}$$

( $n$ : 屈折率、 $\lambda$ : 波長、励起二波長の大小関係  $\lambda_1 < \lambda_2 < \lambda_{THz}$ ) を計算した。

Type0(o-wave + o-wave  $\rightarrow$  o-wave)のコリニア位相整合条件により計算を行い、各発生テラヘルツ周波数ごとに同様の処理を行いマッピング化したものを図3に示す。

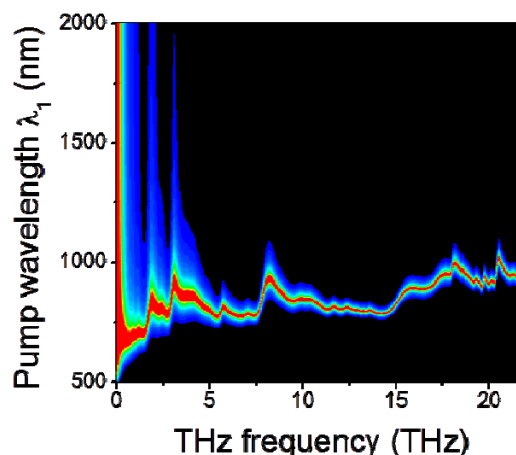


図3 BNA-DFG Type0 位相整合条件下での各発生テラヘルツ周波数におけるコヒーレンス長マッピング

図3の横軸は発生するテラヘルツ周波数、縦

軸は励起二波長のうちの短波長側 $\lambda_1$ を表しており、強度はコヒーレンス長を示している。この結果から、BNA-DFG テラヘルツ波発生は発生する各テラヘルツ波周波数において最適な励起二波長が存在する事がわかる。BNA-DFG の場合励起波長を 700~1,100 nm の間で、発生テラヘルツ周波数ごとに独立に制御する必要がある。

2) テラヘルツ波発生に伴う BNA 結晶の光学特性の同定とテラヘルツ波の高効率発生

1)の実験結果からわかる通り、BNA-DFG によるテラヘルツ波発生には発生周波数に応じた最適な励起二波長が存在する。波長 700~1,100nm の間で任意に波長を選択できる励起二波長光源を用いて、実際に BNA-DFG によるテラヘルツ波発生実験を行った。

励起二波長光源は 532nm を励起光源として、二つの KTP 結晶からなる光パラメトリック発振器から成り立っている。また、二つの KTP 結晶はガルバノに設置されており、コンピュータによる自動制御を可能としている。まず初めに、励起 1 波長を固定しながら、発生可能なテラヘルツ波を全帯域にわたり検出した。その後、励起波長をパラメータとする事で、励起波長と発生テラヘルツ波の出力マッピング測定を行った。その結果を、図 4 に示す。

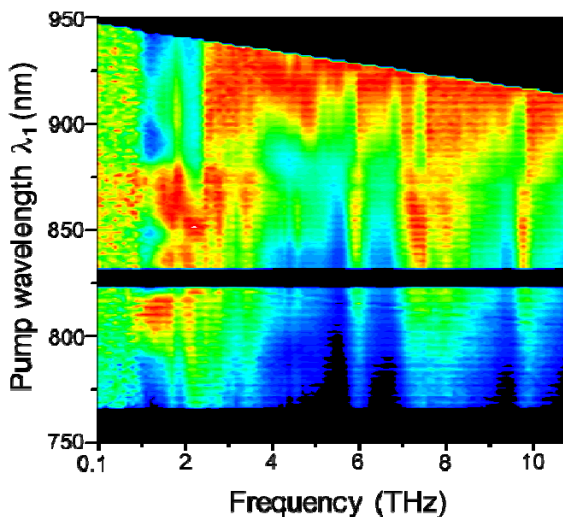


図 4 励起 2 波長をパラメータとした BNA-DFG におけるテラヘルツ波出力マッピング

図 4 は、横軸に発生しているテラヘルツの周波数、縦軸に励起二波長の $\lambda_1$ をとっている。カラーマップは発生したテラヘルツ波の出力強度を示している。明るくなるにつれテラヘルツ波発生強度が大きい事を示している。この結果から、実験的にも各テラヘルツ周波

数において最適な励起二波長が存在する事を示すことが出来た。さらに、図 3 のコヒーレンス長マッピングのシミュレーション結果と対比してみると、比較的良い一致を示している事がわかる。

図 4 のテラヘルツ波出力マッピングのデータを元にして、実験的な BNA-DFG の最適励起二波長を容易に求めることが出来た。発生周波数ごとの最適励起二波長をルックアップテーブル化することで、励起二波長の自動制御にフィードバックをかけ、発生するテラヘルツ波は常に最適位相整合条件下で動作することが可能となった。このシステムを用いて再度 BNA 結晶を励起し、その際に得られたテラヘルツ波のパワースペクトルを図 5 に示す。

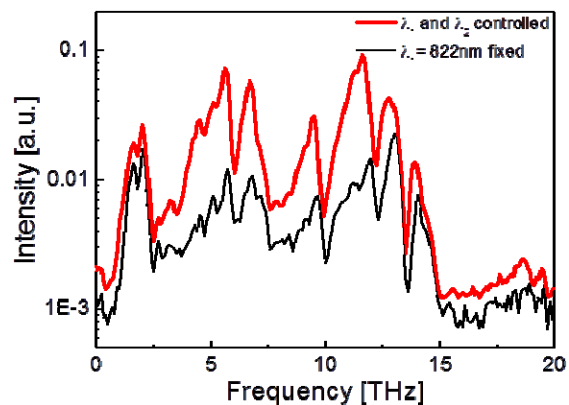


図 5 最適励起二波長を用いた高効率 BNA-DFG テラヘルツ波発生

図 5 は、検出器およびフィルタ等の透過率周波数依存性を考慮していない、生のテラヘルツ波パワースペクトルである。励起波長 $\lambda_1$ を固定して発生した場合と比べて、高効率にテラヘルツ波発生が可能となり実に 11.6 THz においては従来の一桁以上の高出力を得ることに成功した。

本研究では、新規有機非線形 BNA 結晶のテラヘルツ波帯における屈折率算出を行う事で、最適励起二波長を計算および実験的に求め、高効率・広帯域な BNA-DFG テラヘルツ波発生を可能とした。励起波長によるテラヘルツ波出力依存性は顕著であり、励起二波長光源の改善により、今後更なる高効率・広帯域なテラヘルツ波発生が実現可能であることがわかった。

5. 主な発表論文等  
[雑誌論文] (計 3 件)

1. M. Koichi, K. Miyamoto, S. Ujita, T. Saito, H. Ito, and T. Omatsu, "Dual-frequency picosecond optical parametric generator pumped by a Nd-doped vanadate bounce laser", Opt. Exp., 査読有, 19 (19),

- 18523-18528, 2011.
2. K. Miyamoto, S. Miyagi, M. Yamada, K. Furuki, N. Aoki, M. Okida, and T. Omatsu, "Optical vortex pumped mid-infrared optical parametric oscillator", *Opt. Exp.*, 査読有, 19 (13), 12220-12226, 2011.
  3. 宮本克彦, "有機非線形光学結晶 DAST および BNA を用いた広帯域波長可変テラヘルツ波光源", *光アライアンス*(日本工業出版)、査読無、21 (6), 1-5, 2010.

[学会発表] (計 9 件)

1. K. Miyamoto, A. Lee, S. Ujita, T. Saito, T. Omatsu, "High-repetition-rate, picosecond THz output from a DAST-DFG pumped by 1.55  $\mu\text{m}$  dual-frequency picosecond laser", *Advanced Solid-State Photonics (ASSP)*, 2012 年 1 月 31 日, San Diego, USA.
2. K. Miyamoto, S. Miyagi, M. Yamada, M. Okida, N. Aoki, and T. Omatsu, "2 m Optical Vortex Output from a Degenerated Optical Parametric Oscillator", *Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim 2011 (CLEO PR)*, 3630-CT-4, 2011 年 8 月 29 日, Sydney, Australia.
3. K. Miyamoto, M. Koichi, S. Ujita, and T. Omatsu, "1.5 $\mu\text{m}$  dual-frequency pico-second optical parametric generator pumped by a Nd-doped vanadate bounce laser", *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2011)*, CTuD4, 2011 年 5 月 2 日, Baltimore, USA.
4. M. Koichi, S. Ujita, Y. Maeda, K. Miyamoto and T. Omatsu, "MHz repetition rate, pico-second mid-infrared generation pumped by a Nd-doped vanadate bounce laser", *Nonlinear Photonics, NME47(6/21)*, 2010 年 6 月 21 日, Karlsruhe, Germany.
5. 齋藤岳史、宇治田秀人、小市真樹、宮本克彦、尾松孝茂、"狭線幅 1.5 $\mu\text{m}$  帯 2 波長ピコ秒光パラメトリック発生", 第 59 回応用物理学関係連合講演会、16p-E9-5、2012 年 3 月 16 日、早稲田大学。
6. 柴田浩昌、菜嶋茂喜、細田誠、横江拓人、井上和亮、橋本秀樹、宮本克彦、野竹孝志、南出泰亜、伊藤弘昌、"テラヘルツ時間領域分光法による BNA 結晶からの THz 波放射特性の評価 II", 第 72 回応用物理学学会学術講演会、1a-F-9、2011 年 9 月 1 日 山形大学。
7. 宇治田秀人、齋藤岳史、宮本克彦、尾松孝茂、"高出力ピコ秒 Nd ドープバナデートバウンスレーザー励起による 3.2 テラヘルツ波発生", *日本光学会年次学術講演会 29pE1*, 2011 年 11 月 29 日、大阪大学。
8. 前田諭逸、宇治田秀人、小市真樹、宮本克彦、尾松孝茂、"側面励起バナデートピ

- コ秒レーザー励起中赤外光発生"、レーザー学会学術講演会第 31 回年次大会、09aIV-4、2011 年 1 月 9 日、電気通信大学
9. 前田諭逸、宇治田秀人、小市真樹、宮本克彦、尾松孝茂、"側面励起バナデートピコ秒レーザーによる高出力中赤外光パラメトリック発生", 第 71 回応用物理学学会学術講演会、14a-D-5、2010 年 9 月 14 日、長崎大学

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://physics.tp.chiba-u.jp/~omatsu/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

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

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし