

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：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2016

課題番号：25709028

研究課題名(和文) テラヘルツ周波数領域変調分光法の研究

研究課題名(英文) Development of a frequency-domain modulation spectroscopy system

研究代表者

久武 信太郎 (Hisatake, Shintaro)

大阪大学・基礎工学研究科・助教

研究者番号：20362642

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、申請者独自の自己ヘテロダイン型検出技術を発展させることでTHz周波数領域変調分光システムを世界に先駆けて開発することを目的としていた。構築したシステムを用いて、高抵抗シリコンのキャリア生成によるテラヘルツ波に対する透過率変化を測定したところ、最終段のロックイン時定数を同じにした場合であっても、変調分光方式のほうが少なくとも1桁程度高感度計測が可能となることを実証した。

研究成果の概要(英文)：We developed a frequency-domain modulation spectroscopy system in the terahertz (THz) range based on the self-heterodyne technique to enhance the sensitivity of the small spectral change measurement. To evaluate the effectiveness of our system, we measured absorption of the THz wave caused by photo-induced free carriers generated in a high-resistive Si substrate. We confirmed that the sensitivity of the amplitude absorption measurement was enhanced at least 14 dB. Our new system will pave the way for the sensitive measurement of THz spectral changes induced by photoexcitation in chemical, material, and biomedical sciences.

研究分野：ミリ波フォトニクス、テラヘルツ波フォトニクス

キーワード：テラヘルツ波 ミリ波 計測

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ (THz)波帯(100 GHz - 10 THz)には、タンパク質など巨大分子の分子間相互作用や固体の格子振動に関する準位、気体分子の回転・振動モード等、様々な興味深いスペクトルが存在している。物質固有のスペクトルは指紋スペクトルと呼ばれ、THz 分光解析により癌細胞や禁止薬物を始めとした多くの物質の同定が可能であることが THz 時間領域分光装置 (Time-domain Spectrometer/Spectroscopy: THz-TDS)により示された。近年では THz-TDS は病理学上の組織検査や郵便物の爆薬検査等の応用に供され始めている。

応用展開が明確となった THz-TDS は 2003 年ごろから市販されるようになり、多くの化学・生物物理等、THz 技術を専門としない研究者にとっての貴重な研究ツールとなった。近年では THz 分光に基づく定量化学分析法や化学イメージング法の開拓が期待され始めている。例えば、THz 領域におけるタンパク質の集団的振動モードは、生命機能にとって本質的な役割を担う「タンパク質の構造と機能との相関」を理解するための鍵と考えられていることから、タンパク質の構造変化に伴う振動モード変化の観測が試みられている (E. Castro-Camus et al. Chem. Phys. Lett. 455 (2008) 289)。ところが、スペクトル変化量が極微なため、THz-TDS では構造変化によるスペクトル変化とその他の要因による変化の切り分けができない問題に直面している。一方、同種分子からなる結晶であっても、分子配列が異なれば(いわゆる結晶多形)薬の効き目が劇的に変化するため、THz スペクトルの差分情報から市販錠剤薬の有効成分分布の可視化が試みられている (K. Ajito et al. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 538 (2011) 33)。このような化学分析イメージングにおいてコントラストを決めるのは「検出可能なスペクトル差分の最小値」であり、その測定精度は物質量の定量的推定精度を決する。

このように、THz スペクトルの差分情報の有用性が認識され、その高感度計測の重要性がますます指摘されている一方、その計測法は全く確立されていない。差スペクトルを高感度に検出するには、変調分光が有効であるが、これまでの THz 分光技術では、測定に時間を要するために高速な変調分光が困難であり、単純なスペクトル比較(算術差)から差スペクトルを求めていた。kHz オーダでの変調分光のためには、マイクロ秒程度での振幅・位相検出が必要である。

2. 研究の目的

本研究では、次世代の THz 分光研究を開拓するためのプラットフォームとなる、THz 周波数領域変調分光システムを開発する。本研究では、光技術に基づく THz 周波数領域分光

法 (Frequency-domain Spectrometer/Spectroscopy: THz-FDS)を適用する。

表1. 開発システムの仕様.

周波数分解能	100 kHz~20 MHz
周波数精度	10 ⁻⁴
対象周波数レンジ	50 GHz~2 THz
周波数掃引範囲	単一周波数~2 THz
SN比(w/o 変調分光)@300 GHz	50 dB
測定速度	ロックイン時定数にのみ制限

表 1 に想定されるアプリケーションから決定した目標仕様を示す。研究を通して明らかにする点は以下の 3 点である。

- (1)自己ヘテロダイン型 THz-FDS の実証
- (2)THz 周波数領域変調分光システムへの拡張と性能評価
- (3)本システムの有用性の確認と実用化に向けた技術課題の抽出

3. 研究の方法

自己ヘテロダイン型分光システムを図 1 に示す。研究開始当初は、以下の流れで研究を進める予定であった。(a)光源の時間的コヒーレンスが THz 波位相の測定精度に影響しないよう 2 つの干渉計を最適化する。(b) 自己ヘテロダイン型分光システムを THz 周波数領域変調分光システムへ拡張する。(c) ppm オーダの物質同定や高コントラスト分析化学イメージングの実証を通して、本手法の有用性を世界(様々な分野)に向けてアピールする。

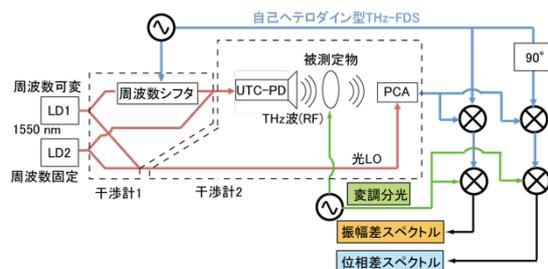


図 1. 自己ヘテロダイン型分光システム.

4. 研究成果

- (1) 自己ヘテロダイン型 THz-FDS の実証

図 2 に構築した自己ヘテロダイン型 THz-FDS のダイナミックレンジ(DR)の周波数特性を示す。図 1 に示すレーザの周波数を掃引して得られるスペクトルを 30 回分積分処理している。計測時のロックイン時定数は 2 ms であった。本システムで得られた DR は 200 GHz で 70 dB 程度、300 GHz で 60 dB 程度であった。測定周波数レンジは 2 THz 以上

である。

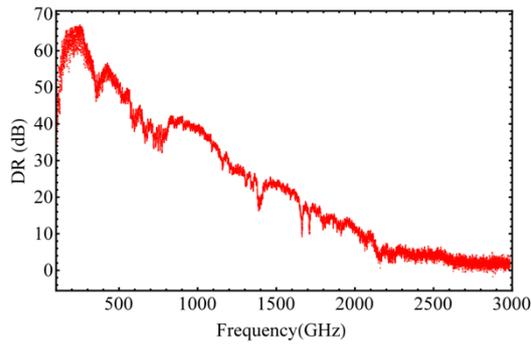


図 2. 自己ヘテロダイン型 THz-FDS のダイナミックレンジ(DR).

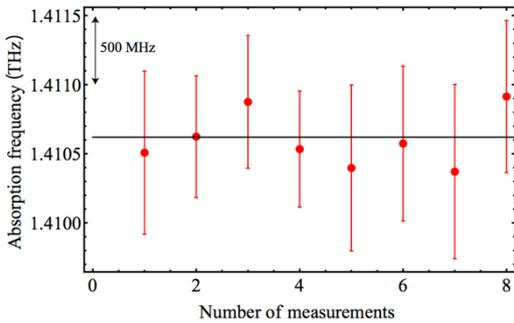


図 3. 1.411 THz における吸収周波数の実験値とデータベースとの比較.

構築したシステムで 1.411 THz に於ける水蒸気の吸収線を分光計測した。得られた吸収スペクトルの位置を HITRAN のデータベースと比較した図を図 3 に示す。1 回の測定は 30 回の周波数掃引の平均値と標準誤差からなっている。得られた測定値は 6 回とも標準誤差の範囲内で HITRAN のデータベースと一致することが確認できた。この時の周波数不確か性はおよそ ± 500 MHz 程度であった。

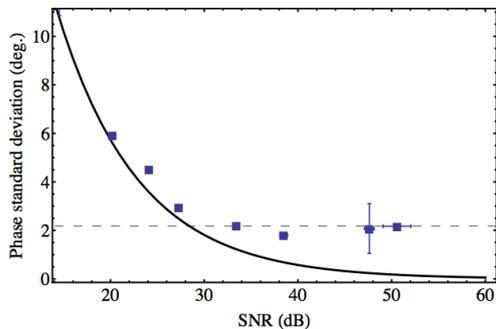


図 4. 位相標準偏差と振幅計測の信号対雑音比(SNR)との関係. 周波数は 200 GHz.

図 4 に位相標準偏差と振幅計測の SNR との関係を示す。周波数は 200 GHz であった。図

中実線は、位相標準偏差の下限の理論値である。なお、1 分間にわたり振幅と位相を計測し、これから振幅計測の SNR と位相計測の標準偏差を算出している。図 1 に示す干渉計 1 と干渉計 2 を最適化してもなお、およそ 30 dB 以上の SNR において、理論限界の位相標準偏差が得られず位相計測の標準偏差は 2 rad 程度に制限されることがわかった。

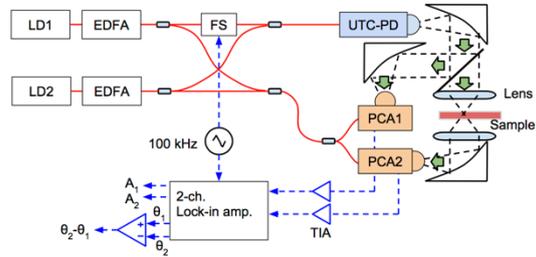


図 5. 差動分光システム.

そこで、図 5 に示す差動分光計測システムへと自己ヘテロダイン型 THz-FDS をアップグレードした。差動分光システムではリファレンスとして 2 つ目の受信機 (photoconductive antenna: PCA) を導入し、THz 波と LO 側のビート信号をそれぞれ二分岐させることで同様の位相揺らぎを検出している。それぞれの PCA で得られた IF 信号はトランスインピーダンスアンプを通してロックインアンプに入力され、得られた位相データの差分を取る構成となっている。

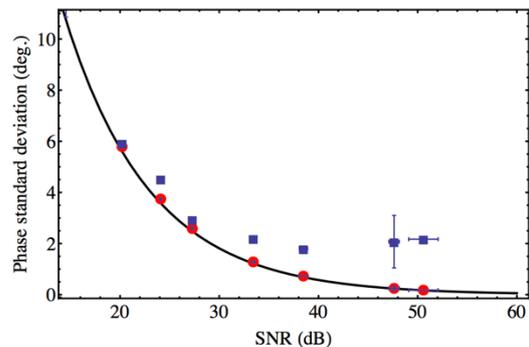


図 6. 差動分光システムで得られた位相標準偏差と振幅計測の SNR との関係. 周波数は 200 GHz.

図 6 に差動分光計系で得られた位相計測の標準偏差を示す。青点は図 5 に示した従来型の自己ヘテロダインシステムで得られた実験値、赤点は差動システムで得られた実験値を示している。実線は理論値である。SNR=51 dB における理論限界値は 0.16 deg. に対し、差動システムで得られた位相検測の標準偏差は 0.18 ± 0.05 deg. であり、理論限界値が達成された。

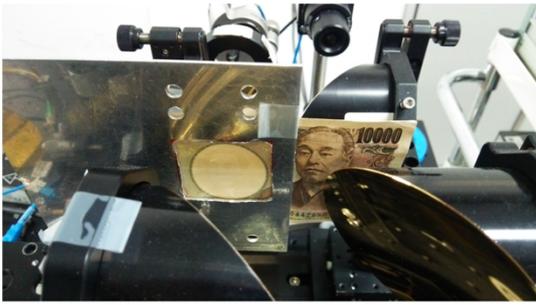


図 7. 透かし (1 万円札) の THz イメージング

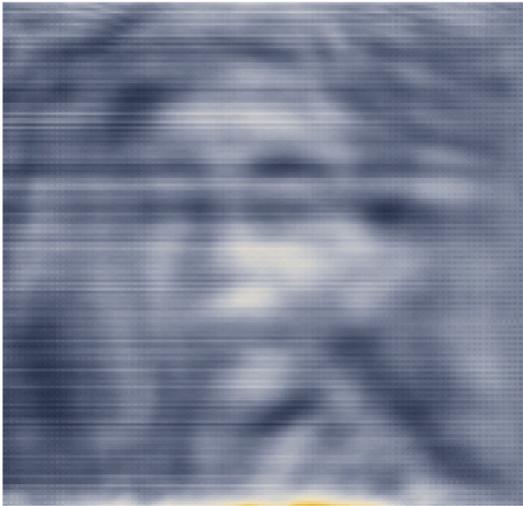


図 8. 自己ヘテロダイン型 THz-FDS で得られた位相イメージング結果.

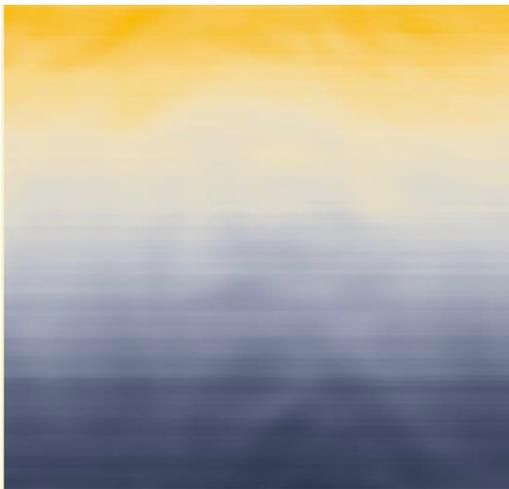


図 9. 差動型自己ヘテロダイン型 THz-FDS で得られた位相イメージング結果.

差動分光計により理論限界の位相標準偏差が得られたため、本システムの有用性をアピールするために 1 万円札の透かしの THz イメージングを行った。図 7 にサンプル部分を示す。軸外し放物面鏡で集光された位置にサンプルを配置し、サンプルを 2 次元平面内で移動させることでイメージングを行った。図 8 と図 9 にそれぞれ自己ヘテロダイン型 THz-

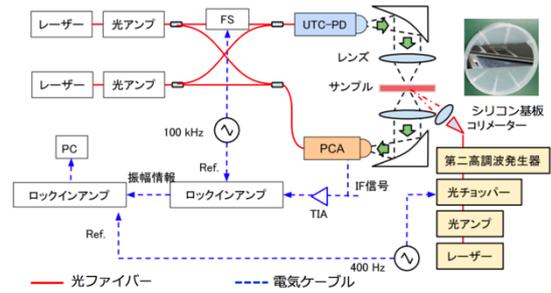


図 10. 自己ヘテロダイン型変調分光システム.

FDS で得られた位相イメージング結果と差動型自己ヘテロダイン型 THz-FDS で得られた位相イメージング結果を示す。周波数は 380 GHz であった。自己ヘテロダイン型 THz-FDS では、位相ドリフトの影響で、明瞭なコントラストが得られていない。一方、差動型自己ヘテロダイン型 THz-FDS では明瞭なコントラストが得られた。

以上のように、フリーラングレーザを用いた THz-FDS により高感度な振幅・位相計測が可能であることが示された。そこで、図 10 に示すように、自己ヘテロダイン型 THz-FDS を変調分光系にアップグレードした。本システムの有用性を確認するために、サンプルには高抵抗シリコン (n 型, 3000 Ω , 200 μm 厚) を用いた。高抵抗シリコンを外部光 (775 nm) により励起し、キャリア生成による透過率変化を変調分光により測定した。PCA から出力された IF 信号は、450 GHz において自己ヘテロダイン法に基づきロックインアンプにより検出される。775 nm の変調周波数 400 Hz の

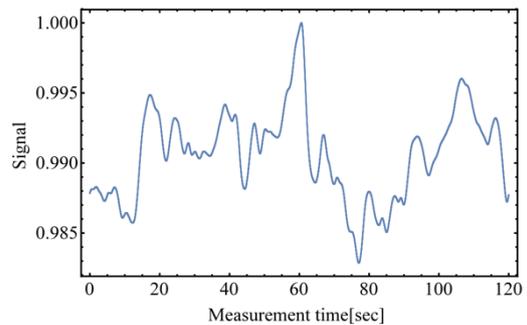


図 11. 1 段目のロックインアンプ出力信号.

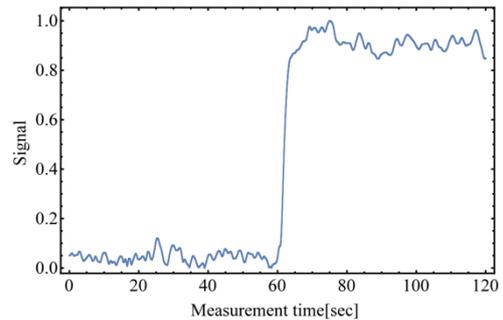


図 12. 2 段目のロックインアンプ出力信号.

信号が2段目のロックインアンプにより検出可能となるように、1段目のロックインアンプの時定数は100 μm と設定した。検出されたIF信号を2段目のロックインアンプに入力することで、励起光により変調された成分が検出される。

図11と図12に各ロックインアンプの出力信号を示す。励起光は測定開始後60秒から入射された。1段目の出力、つまり自己ヘテロダイン型THz-FDSシステムでは励起光による透過率変化を観測することができなかったのに対し、変調分光の導入により感度はおよそ5倍向上し、その結果明瞭な信号観察に成功した。

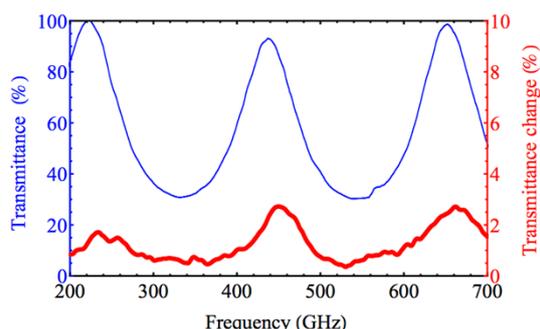


図13. 高抵抗Siサンプルの励起光による透過率変化の周波数特性。

図13に、高抵抗Siサンプルの励起光による透過率変化の周波数特性を変調分光により想定した結果を示す。235 GHz付近で2%、450 GHzで3%、675 GHzで3%の透過率の変化が観察された。図中青線は計算により求められた高抵抗シリコンの透過率の周波数特性を示している。変調分光により観測された透過率変化のピークは、もともとの高抵抗シリコンの透過率のピークと一致していることが分かる。このように変調分光により高感度に差スペクトルの計測に成功した。

以上のように、本研究により(1)自己ヘテロダイン型THz-FDSの実証、(2)THz周波数領域変調分光システムへの拡張と性能評価、(3)本システムの有用性が確認され、所期の目的を達成することが出来た。システムの完成度は高く、高精度な計測が実現できたが、実用化され広く普及するには、他のTHz計測システムと同様に、低コスト化と高感度化が重要となる。本システムではレーザー直後に2台の高出力EDFAを配置していたが、これはRF側、LO側で同相の位相変動とするための工夫であった。変調分光により、必ずしも同相の位相変動でなくても高感度な位相差スペクトルの取得が可能となると考えられるため、低出力なEDFA、あるいは半導体増幅器をUTC-PDとPCAの直前に配置することが可能となる。これは、低コスト化に大きく貢献すると考えられる。レーザー、半導体増幅器、位相変調器、UTC-PD等は1つの半導体チップにまと

めることが可能である。本システムのワンチップIC化が今後の展開として考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計4件)

- ① T. Nagatsuma, S. Hisatake, H. H. Nguyen Pham, "Photonics for Millimeter-wave and Terahertz Sensing and Measurement," *IEICE Trans. Electron.*, vol. E99-C, No. 2, pp.173-180
- ② T. Nagatsuma, S. Hisatake, M. Fujita, H. H. Nguyen Pham, K. Tsuruda, S. Kuwano, J. Terada, "Millimeter-Wave and Terahertz-Wave Applications Enabled by Photonics," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 52, Issue 1, 0600912 (2015/12/9).
- ③ S. Hisatake, Y. Koda, R. Nakamura, N. Hamada, and T. Nagatsuma, "Terahertz balanced self-heterodyne spectrometer with SNR-limited phase-measurement sensitivity," *Optics Express*, Vol. 23, Issue 20, pp. 26689-26695 (2015).
- ④ S. Hisatake, J.-Y. Kim, K. Ajito, and T. Nagatsuma, "Self-heterodyne spectrometer using uni-traveling-carrier photodiodes for terahertz-wave generators and optoelectronic mixers," *Journal of Lightwave Technology*, Vol. 32 Issue 20, pp. 3683-3689 (2014/10/15)

[学会発表] (計13件)

- ① S. Hisatake, J.-Y. Kim, K. Ajito and T. Nagatsuma, "Self-heterodyne Terahertz Spectromete Based on Photodiodes," 2013 IEEE International Topical Meeting on IEEE Microwave Photonics (MWP 2013) (USA).
- ② S. Hisatake and T. Nagatsuma, "Precise Terahertz-wave Phase Measurement Based on Photonics Technology," *IRMMW-THz2014*, T3/C-13.7, (2014/9/16).
- ③ S. Hisatake and T. Nagatsuma, "Precise Terahertz-wave Phase Measurement Based on Photonics Technology," *IRMMW-THz2014*, T3/C-13.7, (2014/9/16)
- ④ Y. Koda, S. Hisatake, J.-Y. Kim, A. Hirata, K. Ajito, and T. Nagatsuma, "Precise Phase Measurement of Continuous Terahertz-wave Based on Balanced Self-heterodyne Technique and Its Application to Phase-contrast Imaging," *Asia-Pacific Microwave Conference (APMC) 2014*, (2014/11/4-9).
- ⑤ 小田祐己, 久武信太郎, 永妻忠夫, "ダブ

- ルロックイン法によるテラヘルツ位相計測の精度向上,” 2015 年電子情報通信学会総合大会 (立命館大学) C-14-5 (2015/3/11).
- ⑥ Y. Koda, S. Hisatake, T. Nagatsuma, “Enhancement of phase measurement sensitivity in terahertz frequency-domain spectroscopy,” The Second International Symposium on Frontiers in THz Technology, Pos2.08st (2015/9/1).
 - ⑦ S. Hisatake, “Precise measurement and visualization of continuous terahertz wave based on photonics technology,” EMN open access week 2015, to be presented (2015/9).
 - ⑧ 久武信太郎、小田祐己、永妻忠夫, “光技術に基づく高精度周波数領域テラヘルツ計測,” 応用物理学会・テラヘルツ電磁波技術研究会 第 1 回研究討論会, (2015/10/6).
 - ⑨ S. Hisatake, Y. Koda, R. Nakamura, N. Hamada, T. Nagatsuma, “Frequency-domain modulation spectroscopy system based on self-heterodyne technique,” IEEE International Topical Meeting on Microwave Photonics (MWP2-15), Paphos, Cyprus, to be presented (2015/10/29).
 - ⑩ S. Hisatake, “Precise THz wave measurements enabled by photonics technology,” EMN Meeting on Optoelectronics, Thailand, B04 (2016/4/12).
 - ⑪ S. Hisatake, “Millimeter wave and THz wave measurements by photonics,” 5th Annual World Congress of Advanced Materials2, China, 1-3-9 (2016/6/7).
 - ⑫ 久武信太郎, “フォトニクスが拓くミリ波・テラヘルツ波計測,” 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会 フォトニクス分科会シンポジウム「フォトニクスの未来を担う研究者」14p-A41-9 (2016/9/14)
 - ⑬ 久武信太郎, “光技術に基づくミリ波・テラヘルツ波計測,” 2016 年電子情報通信学会 ソサイエティ大会 シンポジウム「光技術を利用した高周波信号計測の最新動向」BCI-1-2, (2016/9/20).

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

久武信太郎 (Hisatake, Shintaro)
大阪大学・大学院基礎工学研究科・助教
研究者番号: 20362642