

田中耕一郎

京都大学 物質—細胞統合システム拠点 教授

「高強度テラヘルツ光による究極的分光技術開拓と物性物理学への展開」

§1. 研究実施の概要

本提案はフェムト秒レーザーをもちいた高強度テラヘルツ光発生を高度化し、究極的なテラヘルツ分光技術の開拓とその物性物理学や生命科学への展開を狙うものである。具体的には、(A)波長可変高強度テラヘルツ光源開拓とそれをもちいた非線形分光、(B)半導体量子メタ構造によるテラヘルツデバイスの構築、(C)リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用、の研究を進めている。平成22年度は高強度テラヘルツ光の性能向上と、新しい非線形効果の探索、近接場顕微鏡の構築をすすめた。具体的には以下の成果が得られた。(A-1)テラヘルツ発生／検出光学系を改良し、世界で初めて中心周波数 1THz で 1MV/cm 以上の電場強度の発生に成功した。(A-2) チャープしたフェムト秒レーザー光を用いた差周波発生法により線幅 12GHz の極めて狭い線幅の単色テラヘルツ光が得られた。(A-3) 1MV/cm のテラヘルツ光を GaAs MQW に照射することで励起子発光が生じることを初めて見いだした。(B-1) ダイポールアンテナによる THz 波増強を提案し、THz 近接場顕微鏡により電場増強を実証した。(B-2)金属フォトニック結晶導波路とカプラーの設計・作製を行い、特性評価を開始した。(B-3) 99%以上の透過率を持つサブ波長径のテーパファイバーと単一量子ドットの結合に成功した。(C-1) テラヘルツ近接場顕微鏡の空間分解能の向上を行い、中心波長の 1/30 の空間分解能を達成した。(C-2)テラヘルツ近接場顕微鏡によるスペクトルイメージングを確立し、ダイポールアンテナによるテラヘルツ波電場増強の様子をイメージとして観測することに成功した。

§2. 研究実施体制

(1)「京都大学」グループ

- ① 研究分担グループ長: 田中 耕一郎 (京都大学物質—細胞統合システム拠点、教授)
- ② 研究項目

- (A) 波長可変高強度テラヘルツ光源開拓とそれをもちいた非線形分光
- (B) 半導体量子メタ構造によるテラヘルツデバイスの構築
- (C) リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用

(2)「広島大学」グループ

① 研究分担グループ長:角屋 豊 (広島大学大学院先端物質科学研究科、教授)

② 研究項目

- (A) 波長可変高強度テラヘルツ光源開拓とそれをもちいた非線形分光
- (B) 半導体量子メタ構造によるテラヘルツデバイスの構築

(3)「オリンパス」グループ

① 研究分担グループ長:雙木 満 (オリンパス株式会社診断技術開発部、課長)

② 研究項目

- (C)リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用

§3. 研究実施内容

(文中の引用番号等は(4-1)に対応する)

(A) 波長可変高強度テラヘルツ光源開拓とそれをもちいた非線形分光

(A-1) 世界トップレベルのテラヘルツ電場発生に成功 (京都大学)

テラヘルツ光発生/検出光学系を改良し、世界で初めて中心周波数 1THz で 1MV/cm 以上の電場強度の発生に成功した。図 A-1 にテラヘルツ光発生/検出光学系の概念図と測定したテラヘルツ光の時間波形を示す。発生においては、LiNbO₃ 結晶内において入射する近赤外光パルス面とこれを傾けるための回折格子のイメージ面の角度を一致させ、これにより高効率で、かつ大口径のテラヘルツの発生に成功した。また検出系においては、図 A-1 (左図) に示すように LiNbO₃ 結晶から放射したテラヘルツ光を、放物面鏡による縮小光学系を構築し、回折限界まで小さく絞られたスポット(半値全幅 300 μ m@1 THz)を実現した。これらのテラヘルツ光発生/検出光学系の改良により、テラ

ヘルツ光の最大電場振幅は約 1.1 MV/cm に到達した(図 A-1 右)。この結果は、これまでに同様の手法で報告されている電場振幅に比べて約5倍の増大であり、本計画の推進を加速させるための重要な進歩である。

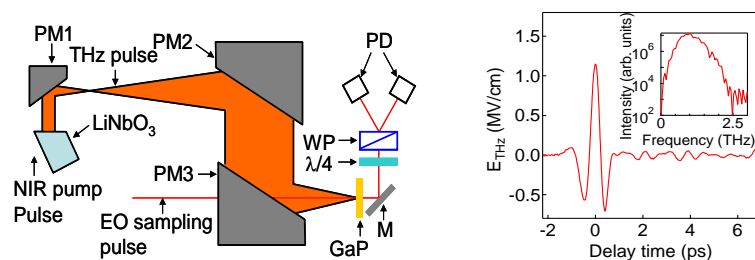


図 A-1 テラヘルツ光発生/検出光学系の概念図(左)。右図は 1MV/cm 強のピーク電場を持つテラヘルツ光パルス(挿入図は周波数スペクトル)。

(成果[A-3])

(A-2) 狭帯域波長可変テラヘルツ光源の開発に成功(京都大学)

再生増幅器の出力段パルスコンプレッサー前のチャープパルスを取り出し、マイケルソン干渉計に導入することで遅延付きチャープパルス対を生成し、ZnTe 結晶を用いた差周波発生法により波長可変狭帯域テラヘルツ光の発生に成功した。中心周波数 1THz において線幅 12GHz の極めて狭い線幅の単色テラヘルツ光が得られた。これは、同様の手法による狭帯域テラヘルツ光発生の先行研究と比較して 16 倍にも及ぶ狭帯域化である。また、干渉計の腕の長さを掃引することで 0.3~1.1THz の帯域での波長可変性を確認した。

(A-3) テラヘルツ励起発光を世界で初めて観測(京都大学、広島大学)

本研究では、図 A-1 で示す 1MV/cm を超えるピーク電場値をもつ THz 光パルスを GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 多重量子井戸に照射し、励起子発光(1.55eV)の観測に成功した。図 A-2 には、高強度 THz 光パルスおよび可視光パルス励起(390nm)によって観測した発光スペクトルである。スペクトル形状がほとんど一致していることから、バンドギャップの 380 分の 1 の光子エネルギーしかもたない THz 光パルス照射によって、励起子発光が生じたことを示唆している。図 A-2(b) は励起子発光強度は 0.45 MV/cm の電場強度以上で急激に出現し、それより高電場では、電場

強度の 8 乗で増加することがわかった。発光強度は残留キャリア密度に比べると遥かに大きいことから、ツェナートンネリング過程、キャリア加速、アバランシェ効果などが1ps 以内の短時間に複合的に起きていることが示唆される。この結果は、THz 光により約 380 倍ものエネルギーのバンド間遷移を起こす世界初の発見であり、THz 非線形分光だけでなく、半導体デバイス物理に与えるインパクトは大きい。

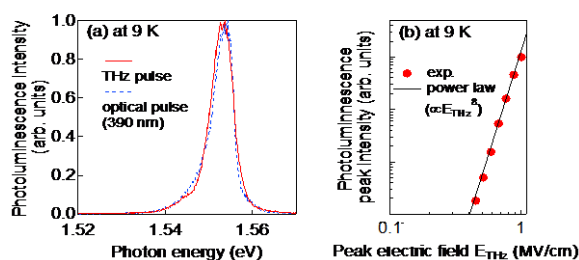


図 A-2 (a) 高強度テラヘルツパルス(最大電場 1MV/cm)および光パルス励起(390nm)によって観測した発光スペクトル。(b) 発光ピーク強度のテラヘルツ電場依存性。

(B)半導体量子メタ構造によるテラヘルツデバイスの構築

(B-1) ダイポールアンテナによる THz 光増強 (広島大学、京都大学)

ダイポールアンテナにおけるテラヘルツ電場増強を提案した。数値シミュレーションにより系統的な予測を行った結果、電場増強度は $1 \mu\text{m}$ ギャップ長の時、150 倍に達することが分かった(図 B-1)。作製した素子は京都大学のグループにおけるテラヘルツ顕微鏡によって評価され、弱いながら(2倍)電場増強が確認された。シミュレーションにより、観測された電場増強が弱い理由がテラヘルツ顕微鏡の空間分解能に起因することが明らかになった。また、磁場に関しても 50 倍以上増強は可能であるという感触を得た。なお、この項目は当初計画では明示的には記載されていないが、下記の(B-3)項目との連携を念頭に進めているものである。

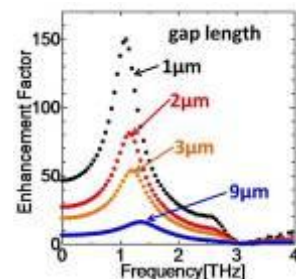


図 B-1 FDTD シミュレーションで得られた電場増強度。

(B-2)金属フォトニック結晶導波路・共振器(広島大学)

1)フォトニック結晶導波路・共振器

昨年度の結果に基づいてフォトニック結晶材料を金とし、金属平行平板導波路(PPWG)中の二次元フォトニック結晶(PhC)、導波路(WG)、および共振器の設計・試作・評価を行った。

①FDTD シミュレーションにより、金属フォトニック結晶の構成としては、三角格子よりも正方格子が導波路としては低損失であることや、PhC と PPWG の間に空気ギャップ領域を設けることでフォトニックバンドギャップ PBG が容易に制御できること等を明らかにした。また、1 THz 近傍で伝搬損失が低く抑えられる導波路構造を得た。ただし、金属を含む THz 構造の FDTD 計算ではスケール不整合が顕著であり、伝搬損失の正確な予測は困難となるため、最終的な特性・性能には共振器 Q 値の実測値等で判断す



図 B-2 作製した PhC-WG の上面写真

の必要がある。②誘導結合型プラズマエッチング装置の導入・立ち上げを行い、PhC、PhC-WG (図 B-2)、および共振器素子の試作を行った。②テーパ金属 PPW 型カップラー(下記)を用いて、PhC のテラヘルツ波伝搬特性の評価を行い、空気ギャップ厚さを変化させることで PBG を制御できることを確認した。③PhC-WG の伝搬特性を評価し、1THz で約 0.4dB/mm の伝搬損失を得た。さらに導波路型キャビティの評価も行い、0.88THz と 0.99THz の共振周波数での Q 値として、それぞれ約 40 と 20 を得た。これらの値は当初目標を満たしているが、測定系としての最適化は済んでいないため、正確な値とするには、測定系の改良が必要である。以上については、2～3 カ月の遅れはあるが、研究は概ね当初計画通りに進捗している。

2) カップラー

自由空間 THz 時間領域分光系で上記デバイスの評価するためのカップラーを開発した。①表面プラズモン波を利用するグレーティングカップラーを作製した。結合効率は 1 THz で約 10dB であった。②広帯域測定を容易にするテーパ金属 PPW 型カップラーを開発した。結合効率は 1THz で約 2 dB であり、比較的良好な特性を示した。これらのいずれのカップラーについても、最適化の余地がある。以上についても 2～3 カ月の遅れはあるが、研究は概ね当初計画通りに進捗している。また①のカップラー設計に際して、表面プラズモン波の制御に関する着想を得、実験の設計を行った。

(B-3) 量子ドットの精密分光測定のための微小共振器の作製(京都大学)

99%以上の透過率を持つサブ波長径のテーパファイバーと、 3×10^8 以上の Q 値を持つトロイド型微小共振器を作製し、さらにクライオスタット内でのテーパファイバーと単一量子ドットの結合に成功した。この系はテーパファイバーの Purcell 効果により、高 NA 対物レンズを凌駕する効率で単一量子ドットの発光を単一モードファイバーへ集光することが可能である。この系を用いて量子ドットの精密分光測定の準備を進めた。

(C) リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用

(C-1) テラヘルツ近接場顕微鏡の空間分解能の向上 (オリンパス、京都大学)

本顕微鏡システムでは、テラヘルツ波センサである電気光学結晶を試料に近接配置し、テラヘルツ波を近接場領域で検出することで、回折限界を超える空間分解能を得ることを特徴とする。本年度は、薄い電気光学結晶を使用することでより近接場での検出を行い、数 μm (テラヘルツ波の波長の約 1/100 に相当) を目標としてテラヘルツ顕微鏡の空間分解能向上を目指した。図 C-1 は、厚さ $10\mu\text{m}$ の電気光学結晶を用いて、金属マスク構造(金属ライン幅: $20\mu\text{m}$ 、ライン間隔: $20\mu\text{m}$)をイメージング

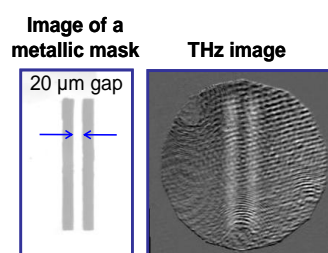


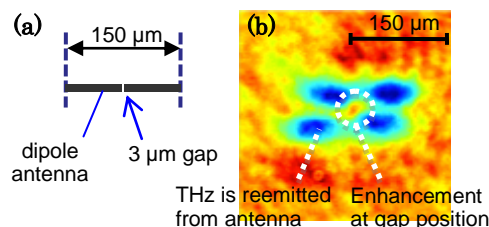
図 C-1 金属マスクの可視及びテラヘルツ波イメージ

した結果である(テラヘルツ波の波長帯域: $3\text{mm} \sim 120\mu\text{m}$)が、 $20\mu\text{m}$ の構造がテラヘルツ波で十分に観測できている。また、ラインプロファイルで空間分解能を評価したところ、テラヘルツ波の中心波長 $430\mu\text{m}$ の 1/30 に相当する $14\mu\text{m}$ の分解能を得た。これは、近接場プローブのようなスキヤ

ニングを必要としないテラヘルツイメージングとしては、世界で最も高い空間分解能である。(成果 [C-2])

(C-2)近接場領域でのスペクトルイメージング(京都大学、オリンパス、広島大学)

(B-1)で述べたダイポールアンテナ(長さ150 μm 、幅10 μm 、ギャップ長さ3 μm 、図C-2(a))のイメージングを行った。図C-2(b)は実験で得られたテラヘルツ波イメージである。この図は、アンテナにテラヘルツ波を照射して約1ps後のテラヘルツ波電場分布を示しており、アンテナからテラヘルツ波が再放射されるとともに、そのギャップ部分でテラヘルツ波が増強されている様子がイメージングできている。このような電場増強はアンテナの極近傍のみで生じるが、



本結果は、近接場測定を行うことでそれを直接イメージとして捉えることに成功したものである。この振幅増強度は2.5倍程度であったが、分解能を向上させることでより大きな電場増強を観測できると予想する。(成果[C-2])

図 C-2 ダイポールアンテナのテラヘルツ波イメージング結果 (a)アンテナ模式図 (b)テラヘルツ波イメージ

(C-3)テラヘルツ顕微鏡の装置化(オリンパス)

現在、可視光とテラヘルツ波による同時観察や高いユーザビリティの実現を目的として、テラヘルツ近接場顕微鏡のプロトタイプ機の開発を行っている。本年度はその装置の設計と組立作業を完了した。今後、京都大学への装置の設置を完了させると共に、生体試料測定を行い、ライフサイエンス分野における本顕微鏡のアプリケーション探索を実施する。

§4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

- [A-1] K. Shinokita, H. Hirori, M. Nagai, N. Satoh, Y. Kadoya, and K. Tanaka, "Dynamical Franz-Keldysh effect in GaAs/AlGaAs multiple quantum wells induced by single-cycle terahertz pulses", *App. Phys. Lett.* 97, 211902 (2010). (doi: 10.1063/1.3518483)
- [A-2] M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka, "Ladder Climbing on the Anharmonic Intermolecular Potential in an Amino Acid Microcrystal via an Intense Monocycle Terahertz Pulse", *Phys. Rev. Lett.* 105, 203003 (2010). (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.203003)
- [A-3] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, "Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃", *Appl.*

Phys. Lett. 98, 091106 (2011). (doi:10.1063/1.3560062)

[A-4] M. Hishida and K. Tanaka, "Long-range hydration effect of lipid membrane studied by terahertz time-domain spectroscopy", Phys. Rev. Lett., in press (2011).

[B-1] Takao Aoki, "Fabrication of Ultralow-loss Tapered Optical Fibers and Microtoroidal Resonators", Jpn. J. Appl. Phys., vol. 49, p.118001, 2010 (DOI:10.1143/JJAP.49.118001)

[C-1] A. Doi, F. Blanchard, H. Hirori, and K. Tanaka, "Near-field THz imaging of free induction decay from a tyrosine crystal", Opt. Express 18, 18419 (2010). (doi:10.1364/OE.18.018419)

[C-2] F. Blanchard, A. Doi, T. Tanaka, H. Hirori, H. Tanaka, Y. Kadoya, and K. Tanaka, "Real-time terahertz near-field microscope," Opt. Express, in press (2011).

(4-2) 知財出願

① 平成 22 年度特許出願内訳(国内 2 件)

② CREST 研究期間累積件数(国内 4 件)