

「先端光源を駆使した光科学・光技術の融合展開」
平成21年度採択研究代表者

H23 年度 実績報告

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ライフフォトンクス技術開発部、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

(4)「早稲田大学」グループ

① 主たる共同研究者: 青木 隆朗 (早稲田大学理工学術院、准教授)

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
- (D) 微小共振器—量子ドット結合系のテラヘルツ精密分光とコヒーレント制御

§ 2. 研究実施内容

(文中の引用番号等は(3-1)に対応する)

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23年度は微小共振器-量子ドット結合系のテラヘルツ精密分光とコヒーレント制御の研究を効率的にすすめるために「早稲田大学」グループを新たに設置した。本年度は、非線形光学現象の観測に注力し、新規なテラヘルツ非線形光学効果を見いだすとともに、近接場顕微鏡において成果が得られた。

(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) テラヘルツ非線形分光による内部量子効率の評価法の提案(京都大学、広島大学)

これまでに GaAs 多重量子井戸にテラヘルツパルス照射し、テラヘルツパルスの高電場によって多段的な衝突イオン化によってキャリアが励起および増幅されることを示してきた[A1]。このキャリア増幅過程を詳しく調べるために、光生成したキャリアのテラヘルツ電場応答を時間領域で詳しく調べた。図 1(a)に示すように、THz 光照射の有無により発光の時間応答は大きく変わることがわかった。これは THz 光照射により、励起子がイオン化し自由キャリアの状態を経て、また励起子に戻る際の「内部量子効率」を反映している。図1(b)に示すように遅い時間での発光の比が3程度になっており、励起子がイオン化した際に、高強度テラヘルツ光によって衝突イオン化をおこしキャリア数が3倍になっていることを意味している。この解析から、いわゆる発光デバイスの「内部量子効率」の評価が可能であることを提案した。

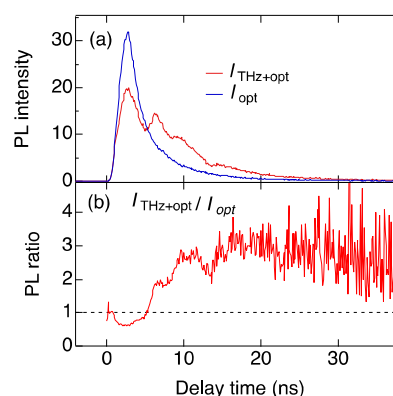


図1 テラヘルツ光照射の有無による GaAs 多重量子井戸の発光減衰の変化。(b) 内部量子効率の評価

(A-2) テラヘルツ光ポンプ-白色光プローブ実験系の確立(京都大学)

テラヘルツパルス励起後の試料の可視域の非線形な吸収スペクトル変化を捉える装置を構築した。図 2 に GaAs 多重量子井戸においてバンド端近傍のフェムト秒時間分解過渡吸収測定を行った結果を示す。図 2 (a)に示すように、テラヘルツパルスの電場がピークの時刻において、励起子のイオン化による励起子吸収の消失や、Franz-Keldysh 効果によるバンドギャップ以下での吸収増加といった、高強度テラヘルツ電場による非線形光学応答が観測された。図 2 (b)に示すように、テラヘルツパルス励起後 80ps においても、光励起のもの(図 2 (c))と

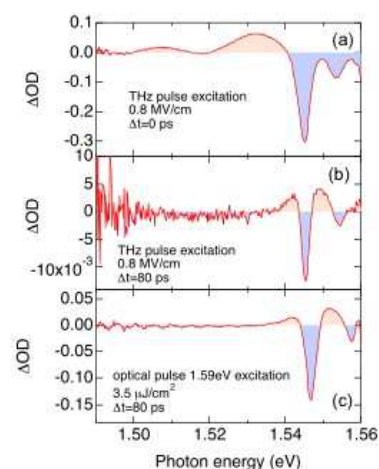


図2 テラヘルツ光照射による GaAs 多重量子井戸の吸収変化。

ほぼ同じキャリアの実励起に伴う励起子吸収の変化が観測された。

(A-3) グラフェンにおけるテラヘルツ非線形光学現象の観測(京都大学)

大気プラズマを用いたテラヘルツ高強度テラヘルツポンプー近赤外プローブの実験系を構築し、テラヘルツ光照射によるグラフェンの近赤外領域での14%にもおよぶ吸収飽和を観測した。テラヘルツ光の光子エネルギーは近赤外光の100分の1程度であることから、この吸収飽和はテラヘルツ光により作られた極めて非摂動論的な状態を反映しているものと考えられる。このキャリアダイナミクスを定量的に理解するため、ボルツマン方程式を用いたシミュレーションを行うことにより実験結果を定性的に再現した。

(A-4) 波長可変高強度テラヘルツ光源開拓(早稲田大学、京都大学)

チタンサファイアレーザー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狭帯域テラヘルツ光の発生に成功した。発生した狭帯域テラヘルツ光のスペクトルには中心周波数の脇にサイドバンド成分が観測されていることから、遅延付きチャープパルス対の生成に関する諸条件の最適化、サイドバンド成分の原因追及と除去を目的とするファイバーレーザーベースの装置の構築に着手した。

(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おけるテラヘルツ波電場増強(広島大学)

量子ドットなどのテラヘルツ光コヒーレント制御等への応用を念頭に、共振特性を有するメタル構造を用いて、局所的にテラヘルツ波を増強する手法の開発を行った。半導体多重量子井戸薄膜における励起子フランチケルディッシュ効果を利用して、ダイポールアンテナギャップにおける電界測定を行った。図3に示すように電場増強のギャップ長依存性が明確に示された。メタルパターンを用いた電界増強に関しては、国内外の機関でも精力的に研究されているが、この結果は、初めての局所的かつ直接的なテラヘルツ波電界観測である。

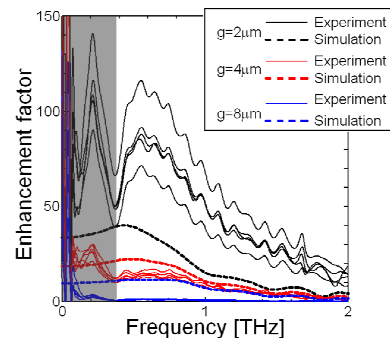


図3 増強度スペクトルの例

(B-2) 量子井戸サブバンド間遷移と結合したテラヘルツ波非線形の発現(広島大学)

フォトニック結晶の欠陥モードを用いたテラヘルツ波導波路および共振器、量子井戸薄膜の埋め込み、およびこれらデバイスへのテラヘルツ波カップラーの開発を行った。

1) フォトニック結晶、導波路、共振器

Siを母材とした金属平行平板中の2次元金属円柱ロッド結晶を作製した。図4に作製したフォトニック結晶構造のSEM像を示す。フォトニックバンド構造がロッド部分と平行平板のエアギャップによって制御できるこ

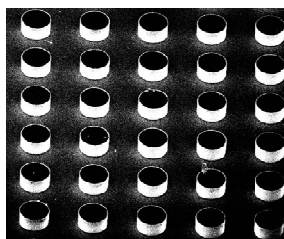


図4 フォトニック結晶構造のSEM像図1(a)

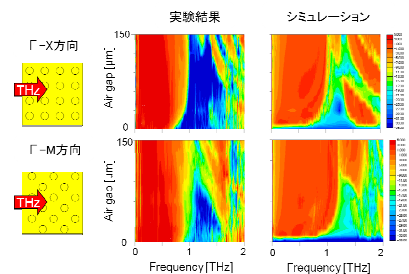


図5 エアギャップによるフォトニックバンドの制御

とを実験的に示すことに成功した。図5にフォトニック結晶の透過率を周波数とエアギャ

ップの関数として示す。シミュレーションと波完全には一致しないものの、エアギャップ間隔によるフォトニックバンドの制御が明確に示された（論文投稿中）。

2)カプラー

上記フォトニック結晶の測定においては、テーパー平行平板型カプラーを用いたが、導波路および共振器の測定には2次元的な集光性能を持つカプラーが必要である。今年度は、ホーンアンテナの試作・評価を行った。アンテナは2mmφのTHz波を200μm×50μmに集光するように設計した。面積比は1/31400である。評価結果では、自由空間と比べて、1THzにおいて-20dBの透過であった。この原因は損失ではなく、測定系の調整が支配的であり、改善の余地があると考えているが、損失であるとしても、電磁波パワー密度は最狭部で、アンテナを用いない場合の3000倍となるため、有効な集光系であると言える。また表面波制御に関する結果を報告した[B1]。

(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装置化（オリンパス、京都大学）

本年度は、共焦点レーザー走査型顕微鏡にテラヘルツ顕微鏡を融合した新システムを京都大学にて完成させた。この装置では、テラヘルツ波観察だけではなく、蛍光観察など共焦点レーザー走査型顕微鏡による従来の可視光観察も併用できるため、細胞などの生体試料の観察に非常に適した仕様となっている[C1]。また、リアルタイム測定ではないが生細胞に対するテラヘルツ光イメージングを行い、水分含有量の違いを明確に示すことに成功した。次年度も引き続き生細胞観察を実施し、世界初となる生細胞のリアルタイムテラヘルツ光顕微鏡観察を実現させる。

(C-2) メタマテリアルの近接場の可視化（京都大学、オリンパス）

メタマテリアルによる電場増強とその非線形光学への適用[C3]を目指して、テラヘルツ近接場顕微鏡をもちいて金属メタマテリアルの近接場画像の取得に成功した。ニオブ酸リチウム結晶として1ミクロン厚の基板を用意し、その上に金属構造体を形成することで、1THzにおける空間分解能として10ミクロンを達成した。さらに、フ

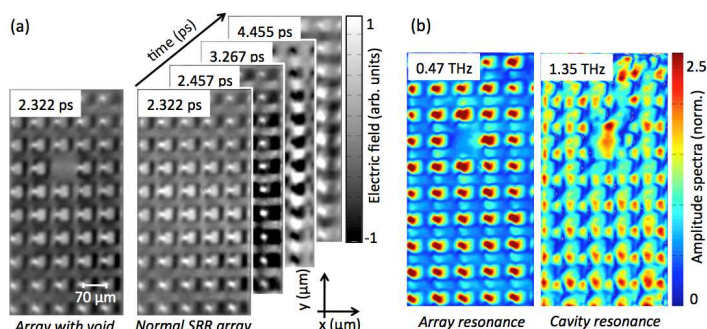


図6 (a)欠陥を含むメタマテリアルの近接場電場画像のピコ秒域の時間変化。(b) (a)をフーリエ変換することによって得られた欠陥を含むメタマテリアルの周波数分解近接場電場像

ォトリソグラフィの手法をもちいてスプリットリング共振器（SRR）構造のメタマテリアルを作製し、図7に示すような明瞭な広視野の近接場電場像の取得に成功した。さらに、インクジェットプリンターをもちいてテラヘルツ帯のメタマテリアルの作製を行い、凹型構造を含む試料を作製した。

(D) 微小共振器－量子ドット結合系のテラヘルツ精密分光とコヒーレント制御（早稲田大）

平成22年度までに実現したテーパーファイバーと単一量子ドットの結合系は、テーパーファイバーの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。特に本テーマで目指す、単一量子ドットの量子状態を高強度テラヘルツ光で制御し、その様子を可視領域の発光検出で観測するシステム構築の上では、その構造上、テラヘルツ光学系との両立に適している。平成23年度は、この系を用いて量子ドットの精密分光測定を行った。特に、単一量子ドットの

発光明滅現象を観測し、その励起波長依存性を測定した結果、オン状態とオフ状態の持続時間が従う冪乗則の指数が励起の余剰エネルギーに依存することを見いだした。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

(A)

A1. H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, K. Tanaka, "Extraordinary carrier multiplication gated by a picosecond electric field pulse", *Nature Communications*, vol. 2, pp. 594-1-594-6, 2011. (DOI: 10.1038/ncomms1598)

A2. Koichiro Tanaka, Hideki Hirori, and Masaya Nagai, "THz Nonlinear Spectroscopy of Solids", *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 1, 301-312 (2011). (DOI: 10.1109/TTHZ.2011.2159535)

A3. I. Katayama, H. Aoki, J. Takeda, H. Shimosato, M. Ashida, R. Kinjo, I. Kawayama, M. Tonouchi, M. Nagai, and K. Tanaka "Ferroelectric soft mode in a SrTiO₃ thin film impulsively driven to the anharmonic regime using intense picosecond terahertz pulses", *Phys. Rev. Lett.* 108, 097401 (2012). (DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.097401)

(B)

B1. Damien Armand, Gen Taguchi, and Yutaka Kadoya "Mechanical active control of surface plasmon properties", *Opt. Express*, 20, 9523 (2012). (DOI: 10.1364/OE.20.009523)

(C)

C1. A. Doi, F. Blanchard, T. Tanaka, and K. Tanaka, Improving spatial resolution of real-time terahertz near-field microscope, *Journal of Infrared Millimeter and Terahertz Waves*, vol.32, pp.1043-1051, 2011. (DOI: 10.1007/s10762-011-9812-7)

C2. M. Hishida and K. Tanaka, "Long-range hydration effect of lipid membrane studied by terahertz time-domain spectroscopy", *Phys. Rev. Lett.* 106, 158102 (2011). (DOI: 10.1103/PhysRevLett.106.158102)

C3. Yosuke Minowa, Masaya Nagai, Hu Tao, Kebin Fan, A. C. Strikwerda, Xin Zhang, Richard D. Averitt, and Koichiro Tanaka, "Extremely thin metamaterial as slab

waveguide at terahertz frequencies", accepted for the publication in the IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology (2011).

(DOI: 10.1109/TTHZ. 2011.2167832)

C4. M. Hishida, K. Tanaka, "Transition of the hydration state of a surfactant accompanying structural transitions of self-assembled aggregates", J. Phys.: Condens. Matter, in press.

(3-2) 知財出願

① 平成 23 年度特許出願件数(国内 3件)

② CREST 研究期間累積件数(国内 7件)