

「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

H24 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 研究代表者: 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
 - (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)「広島大学」グループ

- ① 主たる共同研究者: 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)「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

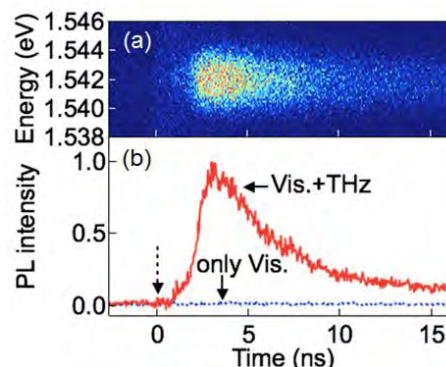
§2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)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) 高強度テラヘルツ光による半導体欠陥占有状態の可視化(京都大学)

可視光領域の連続光と高強度 THz パルスを使った、時間分解発光分光法により非ドープ GaAs/AlGaAs 量子井戸の光キャリアダイナミクスを調べた。図 1(a)は、AlGaAs バリア層を CW 光励起した試料に THz パルスを照射したときの GaAs 井戸層からの励起子発光スペクトルの時間発展である。図 A1(a)をエネルギー積分した発光の時間発展を図 A1(b)に示す。図 1(b)から、定常的に光励起しているときの発光強度(点線)に比べて、THz パルスを照射することで発光強度の 10000 倍の増大(実線)が観測されている。この結果は、THz 電場によって、AlGaAs バリア層の束縛準位に捕獲された光キャリアのイオン化が起きていることを示しており、可視光領域では検知できない微量の不純物準位の新たな測定法としての応用が期待される。また、関連した内容の論文発表をおこなった。[京 3, 京 4]



図A1(a). 波長分解発光ダイナミクス。
(b)発光の時間発展。

(A-2) チャープ光パルス干渉による波長可変狭帯域テラヘルツ波の発生(早稲田大学)

波長可変狭帯域テラヘルツ波発生の方法として、チャープパルスをマイケルソン干渉計により干渉させる方法をもちいた。波長可変狭帯域テラヘルツパルスの発生に成功し、干渉計の腕の長さを掃引することで 0.1~1.1THz の帯域での波長可変性を確認した。さらに、狭帯域テラヘルツパルスのチャープ制御理論を構築し、実験による検証を行った。図 A2 に示すように、帯域の中心周波数依存性の小さな、チャープの抑制されたテラヘルツ波の発生に成功した。[早 1]

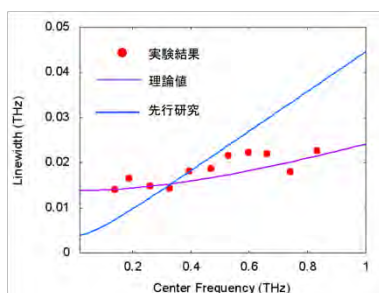


図 A2. 帯域の中心周波数依存性

(A-3) 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。今回、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 A3 に示すように、局所的かつ直接的な観測において 40 倍の増強を実証した。さらに共振周波数や増強度を高める方策を考案した。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。

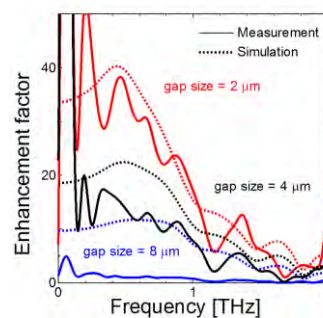


図 A3. 増強度スペクトルの例

(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) 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)

1)フォトニック結晶, 導波路, 共振器:THz 領域のフォトニック結晶導波路を作製した。図 B1 に導波路透過後の THz 波スペクトルを示す。フォトニックバンド構造に対応したスペクトルと分散特性を確認した。また、京都大学において、高強度 THz 光源を用いる低温測定系を構築するとともに、空気中水分子による吸収をさけるため、導波帯域が 1THz 弱となるように、素子の再設計を行っ

た。また、昨年度完了したフォトニック結晶に関する成果を発表した。[広1、広2]

2)カプラー: 上記フォトニック結晶導波路の測定においては、カプラーとしてホーンアンテナを用いた。昨年度の試作結果を踏まえ、1mm φの THz 波を 200 μm × 50 μm に集光するように再設計した。アンテナ特性を図 B2 に示す。ほぼ 100%の透過率を確認した。また京都大学 G の THz 波顕微鏡を用いて、ホーンアンテナによって集光された部分の THz 波を観測し、約 4 倍の電界増強効果を確認した。[広3]

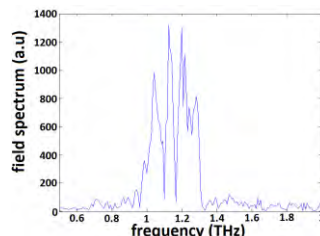


図 B1 導波スペクトル

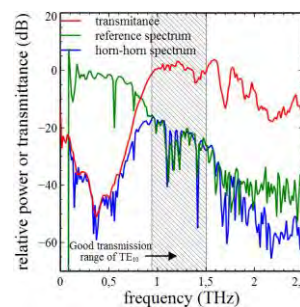


図 B2 ホーンアンテナ特性

(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) λ/150 の空間分解能の達成 (京都大学)

テラヘルツ近接場顕微鏡において、テラヘルツ波の波長(1500 μm、周波数 0.2THz)の 150 分の 1 の空間分解能を達成し(図 C1: LiNbO₃ 上の 10 μm ピッチ金属細線の可視及びテラヘルツ波観察像)、テラヘルツ近接場顕微鏡の開発を完了した。[京2, 京 6]

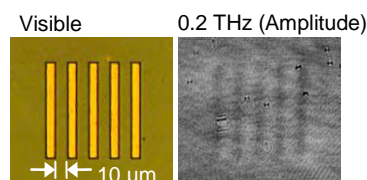


図 C1 空間分解能評価結果

(C-2) 生細胞観察の実現 (京都大学)

リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡で、培養液中の細胞を生きながらテラヘルツ波観察する手法を確立し、世界で初めて生細胞に対するテラヘルツ波顕微鏡観察に成功した(図 C2:ラット白色脂肪細胞の可視及びテラヘルツ波観察像)。球状の脂肪滴が複数蓄積されている脂肪細胞に対し、テラヘルツ波位相イメージ(周波数 2.6THz)で細胞に起因する明瞭なコントラストが得られている。他の細胞についても観察を行いながら、テラヘルツ波顕微鏡観察の効果を検証した。

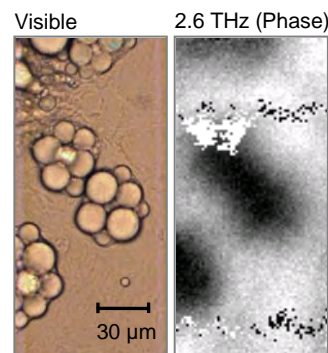
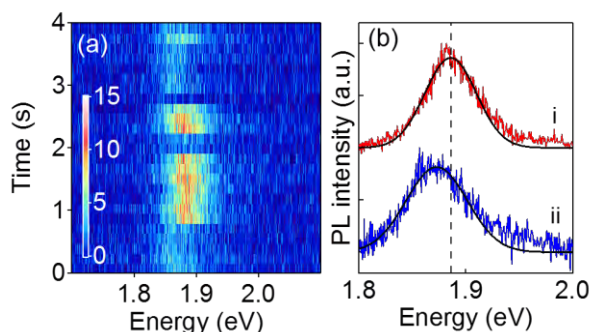


図 C2 ラット白色脂肪細胞の観察結果

(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、京都大学)

半導体量子ドットの点滅現象において、新奇な発光状態を見いだした。図 D1(a)は単一のコアシェル型量子ドット(CdSe/ZnS, 粒径 8nm)の発光強度の時間変化ある。図 D1(a)が示すように、高い励起光強度下(92W/cm²)で測定した場合は、オン状態のおよそ半分の発光強度を有する中間状態が現れる。図 D1(b)が示すように、この中間状態の発光のピークエネルギーはオン状態よりも 10 meV 程度低エネルギー側にシフトしていることが観測された。このシフト量はトリオンの束縛エネルギーと同程度であり、光学的励起によるトリオン形成を示唆している。



図D1 (a)単一QDの時間分解発光スペクトル。(b)オン(i)、中間状態(ii)の発光スペクトル。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

京1. M. Hishida, K. Tanaka, "Transition of the hydration state of a surfactant accompanying structural transitions of self-assembled aggregates", *J. Phys.: Condens. Matter*, 24, 284113, 2012, (DOI: 10.1088/0953-8984/24/28/284113)

京2. F. Blanchard, K. Ooi, T. Tanaka, A. Doi, and K. Tanaka "Terahertz spectroscopy of the reactive and radiative near-field zones of split ring resonator", *Optics Express*, Vol. 20, Issue 17, pp. 19395-19403, 2012 (DOI: 10.1364/OE.20.019395)

京3. Shuntaro Tani, Francois Blanchard, and Koichiro Tanaka "Ultrafast Carrier Dynamics Under High Electric Field in Graphene", *Phys. Rev. Lett.* 109, 166603, 2012 (DOI:10.1103/PhysRevLett.109.166603)

京4. H. Hirori, and K. Tanaka, "Nonlinear Optical Phenomena Induced by Intense Single-Cycle Terahertz Pulses", *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 19, NO. 1, JANUARY/FEBRUARY 2013 (DOI: 10.1109/JSTQE.2012.2221685)

京5. E. Collet, H. Watanabe, N. Bréfuel, L. Palatinus, L. Roudaut, L. Toupet, K. Tanaka, J.-P. Tuchagues, P. Fertey, S. Ravy, B. Toudic, H. Cailleau, "Aperiodic spin state ordering of bi-stable molecules and its photoinduced erasing", *Phys. Rev. Lett.* 109, 257206, 2012 (DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.257206)

京6. F. Blanchard, A. Doi, T. Tanaka, and K. Tanaka, "Real-Time, Subwavelength Terahertz Imaging", *Annu. Rev. Mater. Res.* 2013. 43:11.1–11.23 (doi:10.1146/annurev-matsci-071312-121656)

広1. Jiro Kitagawa, Mitsuhiro Kodama, and Yutaka Kadoya, "Design of Two-Dimensional Low-Dielectric Photonic Crystal and Its Terahertz Waveguide Application", *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol. 51, No. 5, art no. 062201, 2012 (DOI: 10.1143/JJAP.51.062201)

広2. Jiro Kitagawa, Mitsuhiro Kodama, Shingo Koya, Yusaku Nishifuji Damien Armand and Yutaka Kadoya, “THz wave propagation in two-dimensional metallic photonic crystal with mechanically tunable photonic-bands”, Opt. Express, vol.20, no.16, pp.17271-17820, 2012 (DOI: 10.1364/OE.20.017271)

広3. D. Armand, H. Taniguchi, Y. Kadoya, T. Tanaka, K. Tanaka¹, “Terahertz Full Horn-Antenna Characterization”, Appl. Phys. Lett. accepted for publication.

早1. Shohei Kamada, Shuhei Murata, and Takao Aoki, “On the Chirp of Narrowband Terahertz Pulses Generated by Photomixing with Nonlinearly Chirped Laser Pulse Pairs”, Appl. Phys. Express 6, 032701, 2013 (DOI: 10.7567/APEX.6.032701)

(3-2) 知財出願

① 平成 24 年度特許出願件数(国内 4 件)

② CREST 研究期間累積件数(国内 11 件)