

氏名（本籍）	秋葉 拓也（三重県）
学位の種類	博士（工学）
学位記番号	乙第74号
学位授与の日付	平成27年3月22日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当
学位論文題目	励起光とテラヘルツ波の相互作用を用いた近赤外光検出による新規分光法の開発
論文審査委員	(主査) 教授 脇田 和樹 (副査) 准教授 水津 光司 教授 室 英夫 教授 長 敬三 教授 陶 良

学位論文の要旨

励起光とテラヘルツ波の相互作用を用いた近赤外光検出による新規分光法の開発

背景

電磁波はその可能性から多くの周波数帯において技術開発が進められ、われわれの身近においても、携帯電話、電子レンジ、蛍光灯、X線など多くの分野で利用されてきた。これらの電磁波はすべて異なった周波数で実施されており、適材適所で周波数を選択しながら実用化されてきた。こういった電磁波の中でも、近年、THz波と呼ばれる周波数にして0.1~10 THzに位置する電磁波が注目されている。この周波数帯には多くの物質の分子の骨格振動、格子振動、分子の回転、分子間振動などによる電磁波吸収スペクトルが現れることから分子構造を特定するための多くの情報を得ることができる。この特徴を活かした応用技術の開発が次世代の基盤技術になり得るとして期待されている。

目的

従来からテラヘルツ周波数帯での電磁波の発生は難しく、永らく未開拓の電磁波領域であった。この電磁波領域は電波と光波の中間に位置することから電波側からは主に電子回路による発振器で、光波側からはレーザー技術による周波数変換でこの周波数の発生が試みられてきたが、十分な出力が得られているとは言えず、そのアプリケーションも実用化・産業化には至っていない。現在、THz波を用いた分光法として主に用いられているのは、THz時間領域分光法（THz-TDS）及び単色THz波光源による分光法であるが、THz-TDSでは光学遅延ステージや光伝導スイッチなど

実験系が複雑になることや長い測定時間が実用化へのボトルネックになっている。また、単色THz波光源の掃引による分光法では、THz-TDSで問題となっていた測定時間の問題は回避できるが、検出器が問題となる。この分光で用いられる検出器は常温での低雑音・高感度なものが存在せず、高感度な計測の為には、高価かつ極低温まで冷却しなければ使用できない検出器が必要となる。そのため、この分光法は、ユーザーフレンドリーであるとは言い難い。これらの理由から、本論文では、簡便な装置で、サンプルによらない測定の出る分光法が実用化・産業化へのニーズであると考え、エバネッセント波を用いた励起光とTHz波の相互作用を利用した新規分光法によりこのニーズに応えることを目指した。

実験

この分光法では、THz波の発生には二次の非線形光学効果である差周波混合を用いて、チェレンコフ位相整合によりTHz波を発生させる。この時、チェレンコフ位相整合では、分光に重要とされる1 ~ 5 THzの周波数帯において、フラットな出力を有しており、この範囲で分光可能であることを示している。また、チェレンコフ位相整合ではTHz波が角度を持って放射されることから、結晶端面でTHz波が全反射する。この際、テラヘルツ・エバネッセント波が結晶表面に極在する。本分光法では、このエバネッセント波を用いて、サンプルの持つテラヘルツ周波数帯での複素誘電率の情報を得る。通常、サンプルの情報を持つこのTHz波を受光すれば分光は成立するのだが、前述の通り、THz波の受光には特殊な装置が必要となる。そこで、本分光法では、反射して再び結晶内に伝搬するTHz波と励起光との相互作用を利用し、THz波の持つ情報を励起光である近赤外光に転写し、この近赤外光を安価で高感度な光領域の検出器を用いて受光することで、分光が可能となる。

結果

本分光法の可能性を検討するため、単一周波数での固体サンプルの測定を行った。この結果、エバネッセント波の極在する領域にサンプルが接触すると、サンプルのテラヘルツ周波数帯での複素誘電率に起因した励起二波長光の強度変化が得られることを確認した。また、この時に結晶端面からのサンプルの距離と観測される近赤外光の強度の関係は、エバネッセント波の指数関数的な強度分布に起因して変化することも併せて確認した。次に、本分光法の即時応答性を確認するため、常温において蒸発するエタノールをサンプルに測定を行った。その結果、本分光法では、ミリ秒オーダーでの応答が可能であり、前述のTHz-TDSに対する大きなメリットを有することを確認した。最後に、分光を行う為に、周波数を変化させる必要があることから、グレーティングペアを用いて光学系を構築し、波長変化に伴う光路のズレを補正し、純水およびスクロース溶液において、分光測定を行い、サンプルの違いによる強度変化を確認した。以上より、本分光法において、近赤外光の検出により、テラヘルツ周波数帯での分光が可能であることを示した。

考察

本研究において、提案および実証した分光法では、テラヘルツ周波数帯でのサンプルの持つ複素誘電率に起因した変化を励起二波長光の強度の差として検出することに成功した。また、リアルタイムでの測定が可能となることから、化学変化や水溶液の濃度変化など従来までの測定法では困難であったサンプルも測定可能となり、実用化・産業化へのインパクトは大きいと考えられる。しかしながら、本分光法では、測定からサンプルの複素誘電率の導出を行う為には、励起光の強度の変化の絶対値が必要となる。この値は、THz波の強度、エバネッセント波とサンプルの接地面積、サンプルの複素誘電率から決定される。そのため、今後の展望として、新しい分光法としての確立を目指す為にサンプルとTHz波のカップリング改善や基準サンプルから算出される計算式の樹立などを進める必要がある。また、本分光法の高感度化にむけた取り組みとして、端面反射位相整合によるTHz波発生、全反射時に大きな位相変化を有するp偏光のTHz波の利用や導波路構造の導入によるエバネッセント波とサンプルにおけるカップリング効率の向上が考えられる。

結論

以上をまとめると、本研究の意義として、以下の事項が挙げられる。

- ① THz波を直接検出することなく、近赤外光への相互作用を利用した近赤外光の検出を行うことで、安価で常温動作可能な光領域での検出器によるテラヘルツ周波数帯での分光を可能にした。
- ② サンプルのリアルタイムの状態変化に起因するテラヘルツ周波数帯の複素誘電率の変化を観測することに成功した。これによりリアルタイムでのセンシングが求められる化学変化や濃度変化の測定に応用できると考えられる。

審査結果の要旨

周波数にして0.3~10 THzに位置するテラヘルツ (THz) 波と呼ばれる電磁波を用いた分光は、多くの物質の分子の骨格振動、格子振動、分子の回転、分子間振動などによる電磁波吸収スペクトルを測定できることから、非破壊検査やバイオ応用などの研究分野で応用が期待されている。現在、テラヘルツ波を用いた分光法として主に用いられているのは、THz 時間領域分光法 (THz-TDS) 及び単色 THz 波光源による分光法であるが、THz-TDS では光学遅延ステージや光伝導スイッチなど実験系が複雑になることや長い測定時間が実用化へのボトルネックになっている。また、単色 THz 波光源の掃引による分光法では、THz-TDS で問題となっている測定時間の問題は回避できるが、検出器が問題となる。この分光で用いられる検出器は常温での低雑音・高感度な

ものが存在せず、高感度な計測の為には、高価かつ極低温まで冷却しなければ使用できない検出器が必要となる。そのため、この分光法は、ユーザーフレンドリーな分光法であるとは言い難い。

本論文は、産業化・実用化の観点から状態変化を伴うサンプルの物性評価や液体サンプルのストレスフリーな測定を目指し、これらの分光法に代わる新しい分光法の提案を行っている。新しい分光法では、2次の非線形光学効果である差周波発生を用いて、チェレンコフ位相整合により THz 波を発生させている。チェレンコフ位相整合による THz 波光源は、分光応用上重要となる 1~5 THz において、特異な吸収の無い出力を有しており、この光源を用いることで、分光可能範囲の拡大を図っている。また、チェレンコフ位相整合によって発生する THz 波が結晶端面で全反射することに着目し、この全反射の際に生じるエバネッセント波を分光に用いることを提案している。これにより、エバネッセント波の特性を活かし、吸収の強いサンプルであっても分光可能となる。さらに、THz 波の検出器の問題を考慮し、THz 波を直接検出する従来方法とは異なり、THz 波の持つ情報をチェレンコフ位相整合に用いる励起光である近赤外光に転写することで、近赤外光受光による高感度計測を測る方法を考案している。

この新規分光法の有効性を検討するために、単一周波数における固体サンプルの測定、液体サンプルのリアルタイム測定・分光測定をそれぞれ行っている。

単一周波数における固体サンプルの測定では、サンプルをエバネッセント波の存在する領域に近づけると、サンプルの THz 周波数帯での複素誘電率に起因した励起光の強度変化が得られることが確認されている。また、この時に結晶端面からのサンプルの距離と観測される近赤外光の強度の関係は、エバネッセント波の指数関数的な強度分布に起因して変化することも併せて確認されている。さらに、サンプルが金属と誘電体とでは変化に明確な差が確認できていることから、本方式の有効性が示されている。しかし、サンプルの持つ光学定数については、測定結果から導出するには至っておらず、この原因をエバネッセント波とサンプルのカップリングが完全ではない為と考察している。

次に、液体サンプルのリアルタイム測定では、状態変化するサンプルを想定し、常温で蒸発するエタノールをサンプルに分光法の即応性を評価している。その結果、新規分光法では、ミリ秒オーダーでの測定が可能であり、測定時間において、従来方法の THz-TDS に対して優位性が示されている。

また、液体サンプルの分光測定では、周波数掃引に伴う光路のズレをグレーティングペアを用いて補正し、純水とスクロース水溶液の測定を行っている。分光結果からサンプルの吸収の違いを確認することができ、新規分光法において、近赤外光検出により、THz 周波数帯での分光が可能であることを示している。この新規分光法では常温での測定が実施されており、単色光源を用いた分光法に対して優位性が示されている。

本方式の SN 比は、従来分光法である THz-TDS (4 桁)、単色光源 (3 桁) に比較して、2 桁と低いものとなっており、この改善策を具体的に示している。SN 比の向上には、THz 波と励起光の相互作用の増加が必要であると考察しており、その改善策として、端面反射位相整合の導入、導

波路構造を有する結晶の導入を検討している。

これらの結果より、①THz 波を直接検出することなく、近赤外光への相互作用を利用した近赤外光の検出を行うことで、安価で常温動作の光領域での検出器による THz 周波数帯での分光を可能にした。②サンプルのリアルタイムの状態変化に起因する THz 周波数帯の複素誘電率の変化を観測することに成功した。これによりリアルタイムでのセンシングが求められる化学変化や濃度変化の測定に応用できることを結論づけている。さらに、励起光源の安定性の向上、p 偏光の THz 波の導入、光学定数取得に向けた物理モデル導入による計算式の樹立など、今後の研究発展の課題を提起している。

本論文は THz 波を用いた新規分光法について研究したものであり、エバネッセント波を分光に使用し、励起光と THz 波の相互作用を利用することで、THz 周波数帯での分光を近赤外光の検出により可能とするという新しい手法を提案し、液体サンプルの物性評価などにおいて重要な知見を得たものとして価値のある集積であると認める。

したがって、学位申請者の秋葉拓也は、博士（工学）の学位を得る資格があると認める。