



Frequency-domain terahertz spectroscopy using broadband frequency-tunable photomixers

小路, 悠斗

(Degree)

博士 (理学)

(Date of Degree)

2025-03-25

(Resource Type)

doctoral thesis

(Report Number)

甲第9141号

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/0100496422>

※ 当コンテンツは神戸大学の学術成果です。無断複製・不正使用等を禁じます。著作権法で認められている範囲内で、適切にご利用ください。



(別紙様式 3)

論 文 内 容 の 要 旨

氏 名 小路 悠斗

専 攻 物理学

論文題目 (外国語の場合は, その和訳を併記すること。)

Frequency-domain terahertz spectroscopy using
broadbandfrequency-tunable photomixers

(広帯域周波数可変フォトミキサーを用いた
周波数ドメインテラヘルツ分光法の開発)

指導教員

大道 英二

テラヘルツ波は高い物質透過性や指紋スペクトルといった他の周波数帯域にはないユニークな特徴を備えており、基礎、応用の両面から精力的に研究がおこなわれている。これらの研究においてテラヘルツ時間領域分光法(THz-TDS)は広帯域、高速測定といった優れた利点を有しており、中心的な役割を担ってきた。一方で THz-TDS はスペクトル分解能の低い点が短所であるが、テラヘルツ帯における吸収は多くの場合、線幅が広く、これまで測定に支障を生じることはなかった。しかし、近年報告例がある電子スピン共鳴やガス吸収分光ではテラヘルツ帯で MHz オーダーの鋭い吸収を示すことが知られており、THz-TDS では十分なスペクトル分解能を得ることができない。このような課題を解決する方法として本研究ではテラヘルツ周波数領域分光(THz-FDS)に着目した。

THz-FDS はコヒーレンス性の高い連続テラヘルツ波を用いた分光法であり、高いスペクトル分解能を必要とする用途に向いている。THz-FDS は THz-TDS に比べると周波数範囲が狭いことや測定に時間を要するため、テラヘルツ分光法としてはこれまであまり注目されてこなかった。しかし、昨今、テラヘルツ応用の広がりとともに高スペクトル分解能が要求される測定へのニーズが高まってきており、THz-TDS では対応が困難になってきている。本研究ではこのような背景を念頭に、広帯域・高スペクトル分解能。高速掃引を特徴とする新しい THz-FDS 測定法の開発をおこなった。さらに開発した技術を反強磁性共鳴測定ならびにガス吸収分光測定に適用し、その有用性を検証した。以下、本研究で得られた研究成果を 3 つにまとめる。

- 酸化ニッケルにおける反強磁性共鳴モードの磁場中挙動

第 4 章では、室温反強磁性体である酸化ニッケル(NiO)単結晶試料の異なる 3 つの結晶軸方位に磁場を印加し($B//\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 111 \rangle$)、10 T までの磁場範囲で系統的に反強磁性共鳴(AFMR)モードの磁場依存性を明らかにした。ゼロ磁場で観測される 1 THz 付近の AFMR モードでは、磁場印加方位に依存して異なる振る舞いを示した。これら結果についてドメイン構造を考慮した 2 副格子モデルに基づいて解析を行ったところ定性的な振る舞いについては一致がみられたが、低周波数側の AFMR モードやスピントロニクス転移に関わる異常が観測されないなど単純な 2 副格子モデルとは一致しない点が見られた。また、双極子相互作用を取り入れた 8 副格子モデルによっても解析を試みたが、こちらの解析結果もモデルから予想される振る舞いとは一致しなかった。以上の結果から、これまで NiO では単純な 2 副格子モデルに基づく解析が広く行われてきたが、実際の NiO のスピン構造をこのような単純なモデルで説明することは難しく、更なる実験結果と新しいモデルを必要とすることが分かった。

- 高分解能・高速掃引 THz-FDS 法の開発

第 5 章では、THz-FDS の広帯域測定と高分解能測定の両立を実質的に妨げているデータ取得速度の高速化を実現した。新たに開発した方法では Feedback 回路を用いて動的に光学

系の位相制御を行い、光電流が常に極値となるようにファイバーストレッチャーを用いて光位相差を調整した。その結果、テラヘルツ波の強度を全測定周波数範囲においてリアルタイムで測定できるようになり、データ取得速度を従来法である光位相掃引法の約 90 倍まで高速化することに成功した。また、この方法では、Feedback 回路の出力信号が位相情報に相当することから、テラヘルツ波の振幅と位相を同時にモニターすることが可能である。

● THz-FDS を用いたガス吸収分光測定

第 6 章では、第 5 章で開発した装置を用いて希薄アセトニトリルガスのテラヘルツ領域における広帯域・高分解能ガス分光測定を行った。アセトニトリルはテラヘルツ領域において数百 GHz の範囲で分子回転準位に関わる鋭い吸収スペクトルを示すことが知られている。本研究で開発した動的位相制御による高速掃引法を用いることで広範囲にわたるガス吸収スペクトルを高速(66,000 points/hour)で取得することに成功した。また、数 Pa 以下の希薄ガス領域において観測される、線幅が数 MHz 程度の微細構造を観測することに成功した。得られた吸収線の間隔ならび積分強度はデータベースの結果とよい一致をしめした。また、ガスセル内の圧力を連続的に減圧していく過程において、ガス吸収スペクトルが変化していく様子をリアルタイムで観測することにも成功した。

今回の研究では、NiO のテラヘルツ波透過測定では 2 副格子モデルで期待される低周波数側のモードやスピントロニック転移は観測されなかった。また、Brillouin 散乱や Raman 分光によって報告されている 5 つの AFMR モードも観測することができなかった。これらの異なる実験やモデル間の相違を解明するためには、低温環境下における NiO のテラヘルツ分光測定が望ましい。本研究では全ての測定が室温で行われたが、熱擾乱の少ない低温環境下で測定を行うことで新たなモードが発見できるかどうかは今後、重要になると思われる。NiO は反強磁性スピントロニクス観点からも注目を集めており、そのスピン構造の決定は磁性研究の観点のみならず応用面からも注目を集めている。

また、近年、光とスピンが結合した系(オプトマグノニクス)が注目を集めている。このような系では光とスピンの相互変換を介した高速情報通信、高密度メモリなどへの応用が期待されている。このような系の実現に向けて強磁性スピンを用いたマイクロ波との強結合状態についてはすでに多くの例が報告されている。しかし、反強磁性スピンの場合、マグノン周波数がテラヘルツ帯にあることからこれまであまり研究は進んでいない。今後、このような測定において光共振器は光とスピンの強結合状態を実現する上で重要になる。特にフィネスと呼ばれるパラメータが大きい共振器ほど内部を往復する光の寿命が長くなり、相互作用の頻度が増大する。しかし、フィネスの高い光共振器では非常に鋭い共振ピークを示すことから、その測定には高いスペクトル分解能が要求される。その意味で、これまでの THz-TDS を用いた光学系はテラヘルツ帯における高フィネス光共振器の実現には不利であり、THz-FDS のような高スペクトル分解能を有した測定系が今後、必要不可欠にな

っていくことと予想される。

本研究で開発された広帯域・高分解能 THz-FDS 装置は、 $0.1 \sim 1.1$ THz の比較的広い周波数範囲、1 MHz の高い周波数分解能、66,000 points/h という速いデータ取得速度を同時に達成することが可能なテラヘルツ分光装置である。今度、これらの性能をさらに改良していく上で以下に挙げるような改善点が挙げられる。

測定可能な周波数範囲については、現行装置の場合、フォトミキシングデバイスに用いられている光源レーザーの離調範囲によって決まっている。そのため、新たに発振波長帯の異なるレーザーを追加すれば、過去に同じエミッターを用いて発振実績がある 2.75 THz まで拡張することが可能である。このシームレスで広い周波数範囲を連続的に掃引できるという特色は、他の発振器との比較において、フォトミキシングデバイスの最も顕著な利点のひとつである。周波数精度に関しては、現行の性能が主に光源レーザーの発振スペクトルに依存している。DFB レーザーは温度調節によって広い波長範囲をモードホップフリーで調整できるという利点があるが、発振線幅の観点から言えば更なる改良の余地が残されている。仕様用途にも依存するが、例えば、より高いスペクトル分解能が要求されるような測定では光源のレーザーに狭帯域レーザーに置きかえることで 100 kHz 以下の周波数分解能を実現することは比較的容易に実現することができる。現行装置の掃引速度を律速している主な条件は、現在のところフィードバック回路の周波数帯域幅であると考えられている。測定系の応答速度は PI 制御の時定数によって決まっており、将来的には PI 制御パラメータの最適化の余地が残されている。そのため、将来的には PI 制御パラメータの値を高速測定に最適化することにより、さらなる高速化が可能である。

最後に、ガス分光に関してこれまでのような単一ガス種の高感度検出という用途に加え、近年、多種混合ガスの同時検出という用途に対するニーズが高まりつつある。そのような例として、呼気分析と呼ばれる応用が挙げられる。呼気分析では人体の呼気にふくまれる複数のガス種を同時に検出し、そのガス種の濃度、種類から疾病診断や健康モニタリングを行うものである。非侵襲的な検査方法として、近年、注目されている。このようなガス検出の用途では、短時間のうちに複数のガス種を高感度に検出する必要がある。これまで呼気分析にはクロマトグラフィー、質量分析、赤外吸収分光などの手法が用いられてきたが、要求される仕様を全て満たすようなガス検出方法が存在せず、基礎研究の段階にとどまっていた。本研究で開発したガス吸収分光装置はこれらの仕様を同時に満たしうる可能性があり、今後、呼気分析における新しい分析装置として有望である。

氏名	小路 悠斗		
論文 題目	Frequency-domain terahertz spectroscopy using broadband frequency-tunable photomixers (広帯域周波数可変フォトミキサーを用いた周波数ドメインテラヘルツ分光法の開発)		
審査委員	区 分	職 名	氏 名
	主 査	准教授	大道 英二
	副 査	教授	藤 秀樹
	副 査	教授	山崎 祐司
	副 査		
	副 査		印
要 旨			
テラヘルツ波は電波と光波の中間の周波数帯に位置する電磁波の一種である。テラヘルツ波のエネルギーはフォノンやマグノンといった物質中の素励起や分子の回転運動などと同じスケールにあることから、テラヘルツ波を用いてこれらの現象を分光的にプローブすることができる。テラヘルツ波を用いた分光測定ではしばしば、時間領域（タイムドメイン）テラヘルツ分光法と呼ばれる手法が用いられる。この方法では、ピコ秒程度の時間幅を持ったテラヘルツパルスを試料に照射し、その時間応答をフーリエ変換することでスペクトル情報を得ている。強いテラヘルツ強度と広帯域スペクトルが得られることから広く用いられているが、テラヘルツパルスを用いていることからスペクトル分解能が 10 GHz 程度に制限され、高スペクトル分解能測定を行うことが難しい。そのため、当該分野ではこれまで高分解能測定がほとんど行われてこなかった。 本論文ではこのような研究背景の下、広帯域周波数可変フォトミキサーと呼ばれる連続波テラヘルツ光源に着目し、テラヘルツ領域における高分解能テラヘルツ分光装置の開発を行った。この方法では、単色性の高い2色のレーザー光を用いてテラヘルツ波を発生しているため、従来法に比べて 1000 倍以上高いスペクトル分解能を得ることができる。本研究では、この技術を用いて以下に述べるようなテラヘルツ領域における周波数ドメインテラヘルツ分光法を開発し、また、その技術をこれまで測定できなかった高スペクトル分解能測定に応用することを目的としている。 本論文は7章から構成されており、1章～3章は、前述の学術的背景と本研究の目的について述べられている。第4章では広帯域フォトミキサー光源を用いた周波数ドメインテラヘルツ分光法を室温反強磁性体である酸化ニッケル（NiO）の反強磁性マグノン分光に応用した。特に、異なる結晶軸方位に磁場を印加し、反強磁性マグノンの磁場中挙動を世界で初めて系統的に調べることに成功した。得られた実験結果がこれまで広く解析に用いられてきた2副格子モデルとは一致しないことを明らかにした。この結果は、NiOの磁気構造がこれまで考えられてきた単純なスピン構造では説明できないことを実験的に示したものである。 第5章では、広帯域周波数ドメインテラヘルツ分光において測定の律速となっていた周波数掃引速度を向上するため、フィードバック回路を用いた高速周波数掃引法を開発した。この装置の開発により、周波数掃引速度を以前に比べて約 90 倍高速化することに成功し、周波数ドメインテラヘルツ分光法の有用性を大幅に向上することに成功した。 第6章では、第5章で開発した技術を希薄アセトニトリルのガス吸収分光測定に応用した。希薄ガスの吸収線は数 MHz の非常にシャープな吸収を示すことが知られており、本装置を用いて超微細構造の観測に成功した。また、高速掃引技術を用いることでリアルタイムでのガス検出にも成功した。 以上の結果から、本論文では広帯域周波数可変フォトミキサーを用いて高いスペクトル分解能を有したテラヘルツ分光測定を可能にした。また、実際に開発した技術を反強磁性体のマグノン分光や希薄ガスのガス吸収分光にも応用し、その有用性を実験的にも明らかにした。特に酸化ニッケルの実験結果からはその磁性が単純なスピン構造では説明できないことを実験的に示しており、物理的にも大きな意義を有している。 以上のように本論文ではテラヘルツ分野における新しい高分解能分光技術を確立することに成功している。本技術の応用範囲は磁気共鳴、ガス分光、共振器光学など多岐にわたることから、波及効果も大きく、今後、更なる発展、応用が期待される。よって、これら一連の成果の当該分野における学術的な寄与は大きく、本論文の高い学術的価値を認めることができる。よって、学位申請者の小路悠斗は、博士（理学）の学位を得る資格があると認める。			