

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月30日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23655004

研究課題名（和文） 2次元時間領域テラヘルツ分光法の開拓

研究課題名（英文） Exploring two-dimensional time-domain terahertz spectroscopy

## 研究代表者

服部 利明 (HATTORI TOSHIAKI)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：60202256

## 研究成果の概要（和文）：

古典的振動子に対する2次元時間領域テラヘルツ分光の信号の表式化をおこない、様々な系に対して、2次および3次の非線形光学過程それぞれについて、時間領域および周波数領域のスペクトルを計算した。高精度テラヘルツ分光測定装置を用いてタンパク質の線形なテラヘルツ分光測定をおこない、おもにその水和に関して幅広い情報を得た。高温超伝導体からのテラヘルツ波発生の機構解明のために、3角形状の発生素子結晶を作製し、それにより広帯域の周波数可変性を実現した。

## 研究成果の概要（英文）：

Expressions for two-dimensional time-domain terahertz spectroscopy signals were formulated, and time- and frequency-domain spectra were calculated for various parameters. Hydration of protein in aqueous solutions was studied using high-precision terahertz time-domain spectroscopy. Broadly tenable terahertz emission was achieved using triangular mesas of high-temperature superconductors.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,100,000	930,000	4,030,000

## 研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：分子動力学，テラヘルツ分光

## 1. 研究開始当初の背景

強力なテラヘルツ波パルスの発生法の研究が進展しつつあり、それを用いた非線形テラヘルツ光学現象の観測の報告が少しずつなされてきた。非線形現象を用いてより精密な議論をするためには2次元分光法をおこなうことが必要である。研究代表者は、古典振動子モデルを用いたテラヘルツ2次元分光の簡単な理論をまとめて、発表した。

## 2. 研究の目的

2次元テラヘルツ時間領域分光法を開拓することを目的とする。具体的には、この手法によりどのような系のどのような性質が明らかになるのかを、はっきりさせること。また、適切な実験手法を確立すること。そのために、対象物質の基本的な性質を明らかにすることである。

## 3. 研究の方法

理論的研究の方法は、既に得られた信号の表式をもとに2次元分光を様々な系に適用し、

時間領域および周波数領域スペクトルを計算する。

実験的研究の方法は、テラヘルツ時間領域分光測定により、2次元分光の対象となる物質のテラヘルツ領域における分光学的性質を詳細に調べることである。また、対象物質の一つである高温超伝導体についてはテラヘルツ波発生源としての性質を2次元分光によって調べることが有望な研究対象となるので、テラヘルツ波発生の物理的機構について、分光学的手段によって調べる。

#### 4. 研究成果

2次元時間領域テラヘルツ分光法の開拓にむけて、以下の3点の研究をおこない、それぞれ十分な成果を得た。

まず、古典的振動子に対する2次元分光時間領域テラヘルツ分光の信号の表式と、均一分布の単一モード系に対する時間領域信号の計算をおこなった。この結果をもとにして、不均一広がりを持つ単一モード系、非線形に結合した2モード系のそれぞれに対して、2次および3次の非線形光学過程それぞれについて、非調和性による非線形性と非線形分極による非線形の2つの場合に対して、時間領域およびそれを2次元フーリエ変換して得られる周波数領域のスペクトルを、さまざまな値のパラメータに対して計算し、一覧表を作成した。これにより、対象とする系の様々な性質が、2次元スペクトルに、どのように表れるのかが、一目で理解できるようになった。2次元分光のデータは一般に非常に複雑であり、そこから有用な情報を得ることは容易ではないことが多いが、このようなデータベースを用意しておくことで、解析が容易にできるようになる。

以下に示す図1は、不均一広がりのある系、図2は非線形結合のある2モード系における、周波数領域の2次非線形2次元スペクトルの計算例である。2次元データから系の様々な性質が明瞭に読み取れることが、分かる。

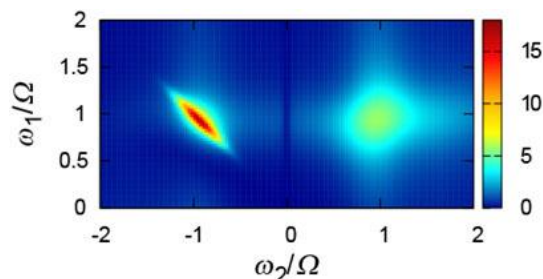


図1

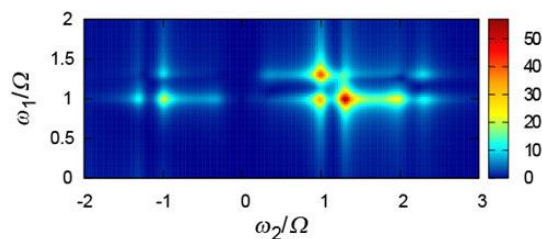


図2

2次元テラヘルツ分光の対象として重要であるタンパク質の線形なテラヘルツ分光測定をおこない、おもにその水和に関して幅広い情報を得た。タンパク質の生体中での機能や、タンパク質に対する様々な操作はおもに水中でおこなわれ、その機能や性質の発現にはタンパク分子周囲の水分子の振舞いが深くかかわっているが、テラヘルツ分光はその超高速ダイナミクスについて、最も直接的に情報を得ることのできる実験手法である。高精度テラヘルツ分光測定装置の開発を行い、それにより、タンパク質分子の水和分子数や、イオンなどによるその変化を観測することに初めて成功した。

高温超伝導体からのテラヘルツ波発生の機構解明のために、3角形状の発生素子結晶を作製し、それにより広帯域の周波数可変性を実現した。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

(1) K. Delfanazari, H. Asai, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, T. Kitamura, T. Yamamoto, M. Sawamura, K. Ishida, M. Tachiki, R. A. Klemm, T. Hattori, and K. Kadowaki, Study of coherent and continuous terahertz wave emission in equilateral triangular mesas of superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  intrinsic Josephson junctions, *Physica C*, 査読有, in press (2013).

(2) R. A. Klemm, K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, T. Kitamura, T. Yamamoto, M. Sawamura, K. Ishida, T. Hattori, and K. Kadowaki, Modeling the electromagnetic cavity mode contributions to the THz emission from triangular  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  mesas, *Physica C*, 査読有, in press (2013).

(3) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, R. Nakayama, T. Kitamura, S. Hagino, M. Sawamura, T. Hattori, T. Yamamoto, H. Minami, and K. Kadowaki, THz

Emission from a Triangular Mesa Structure of Bi-2212 IJJs. *J. Phys. Con. Ser.*, 査読有, in press (2013).

(4) K. Delfanazari, H. Asai, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, T. Kitamura, T. Yamamoto, M. Sawamura, K. Ishida, C. Watanabe, S. Sekimoto, H. Minami, M. Tachiki, R. A. Klemm, T. Hattori, and K. Kadowaki, Tunable terahertz emission from the intrinsic Josephson junctions in acute isosceles triangular Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> mesas, *Opt. Express*, 査読有, **21**, 2171-2184 (2013).

<http://dx.doi.org/10.1364/OE.21.002171>

(5) M. Tsujimoto, H. Minami, K. Delfanazari, M. Sawamura, R. Nakayama, T. Kitamura, T. Yamamoto, T. Kashiwagi, T. Hattori, and K. Kadowaki, Terahertz imaging system using high-Tc superconducting oscillation devices, *J. Appl. Phys.* 査読有, **111**, 123111(4 pages) (2012).

<http://dx.doi.org/10.1063/1.4729799>

(6) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, T. Yamamoto, R. Nakayama, S. Hagino, T. Kitamura, M. Sawamura, T. Hattori, H. Minami, and K. Kadowaki, THz emission from a triangular mesa structure of Bi-2212 intrinsic Josephson junctions, *J. Phys. : Conf. Ser.* 査読有, **400**, 022014(4 pages) (2012).

[doi:10.1088/1742-6596/400/2/022014](https://doi.org/10.1088/1742-6596/400/2/022014)

[学会発表] (計 29 件)

(1) 畑隆介, 青木克仁, 白木賢太郎, 服部利明, テラヘルツ分光を用いたポリエチレングリコール水溶液の水和観測, 応用物理学会, 2013. 3. 27-30, 神奈川工科大学

(2) 青木克仁, 田中智恵, 畑隆介, 白木賢太郎, 服部利明, THz-TDS でみたタンパク質水溶液中の水和水に対する塩の影響, 応用物理学会, 2013. 3. 27-30, 神奈川工科大学

(3) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Kitamura, M. Sawamura, K. Ishida, S. Sekimoto, C. Watanabe, T. Yamamoto, H. Minami, M. Tachiki, R. A. Klemm, T. Hattori, and K. Kadowaki, Powerful and Tunable Terahertz Radiation in Mesa Structures of Bi2212 Intrinsic Josephson Junctions, 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013. 3. 26-29, 広島大学 東広島キャンパス

(4) T. Hattori, Terahertz spectroscopy for hydration study, 2nd Annual Conference and EXPO of AnalytiX-2013, 2013. 3. 21-23,

Suzhou, China

(5) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Kitamura, T. Yamamoto, M. Sawamura, K. Ishida, C. Watanabe, S. Sekimoto, H. Minami, M. Tachiki, T. Hattori, R. A. Klemm, and K. Kadowaki, High Temperature Superconducting Terahertz Emitters with Various Mesa Structures, APS March Meeting 2013, 2013. 3. 18-22, Baltimore, MD, USA

(6) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Kitamura, M. Sawamura, K. Ishida, T. Yamamoto, M. Tachiki, R. A. Klemm, T. Hattori, and K. Kadowaki, Broadly Tunable Terahertz Wave Radiation in Acute Isosceles Triangular Mesas of Superconducting Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> Intrinsic Josephson Junctions, International Symposium on Frontiers in THz Technology, 2012. 11. 27-29, Nara

(7) 青木克仁, 田中智恵, 高井英輔, 白木賢太郎, 服部利明, THz-TDS によるタンパク質 - 塩水溶液中での水和の研究, シンポジウム「テラヘルツ分光法の最先端 VI ～ここまでできたテラヘルツ時間領域分光～」, 2012. 10. 25-26, 筑波大学

(8) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Kitamura, M. Sawamura, K. Ishida, T. Yamamoto, M. Tachiki, R. A. Klemm, T. Hattori, and K. Kadowaki, Broadband terahertz wave radiation in various geometries of mesa structures in superconducting Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub> intrinsic Josephson junctions, シンポジウム「テラヘルツ分光法の最先端 VI ～ここまでできたテラヘルツ時間領域分光～」, 2012. 10. 25-26, 筑波大学

(9) 畑隆介, 青木克仁, 白木賢太郎, 服部利明, PEG 水溶液のテラヘルツ分光, シンポジウム「テラヘルツ分光法の最先端 VI ～ここまでできたテラヘルツ時間領域分光～」, 2012. 10. 25-26, 筑波大学

(10) K. Delfanazari, H. Asai, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, T. Yamamoto, T. Kitamura, M. Sawamura, K. Ishida, H. Minami, R. A. Klemm, T. Hattori, and K. Kadowaki, Experimental and theoretical study of several geometries for THz waves radiation in intrinsic Josephson junctions Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+δ</sub>, 37th International Conference on Infrared, Milimeter, and Terahertz Waves, 2012. 9. 23-28, Wollongong, Australia

(11) 青木克仁, 吉川弘樹, 白木賢太郎, 服部利明, テラヘルツ時間領域分光法によるリゾチーム水溶液中の水和水の観測, 第 6 回分子科学討論会, 2012. 9. 18-21, 東京大学本郷

キャンパス

(12) 青木克仁, 吉川弘樹, 白木賢太郎, 服部利明, THz-TDS によるリゾチーム水溶液中の水和水の観測, 応用物理学会, 2012.9.11-14, 愛媛大学・松山大学

(13) K. Delfanazari, H. Asai, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, T. Kitamura, M. Sawamura, K. Ishida, H. Minami, T. Yamamoto, R. A. Klemm, M. Tachiki, T. Hattori, and K. Kadowaki, Tunable THz Waves Radiation from Various Shapes of Mesas in High Temperature Superconductor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  Intrinsic Josephson Junctions; Designing of Mesa Arrays for Powerful THz Radiation, 応用物理学会, 2012.9.11-14, 愛媛大学・松山大学

(14) 服部利明, 非線形光学によるテラヘルツ波の発生と検出 -基礎と応用-, 応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究会 若手サマースクール, 2012.8.6-8, 浅間温泉 和泉荘 (長野県松本)

(15) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Yamamoto, M. Sawamura, R. Nakayama, H. Minami, T. Kitamura, T. Hattori, K. Kadowaki, R. A. Klemm, Tunable, Coherent and Continuous Terahertz Waves Emission from Various Shapes of Mesas in Intrinsic Josephson Junctions  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ : Designing of Mesa Arrays, International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity, 2012.7.29-8.3, Washington, DC, USA

(16) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Yamamoto, M. Sawamura, T. Kitamura, R. Nakayama, K. Ishida, H. Minami, R. A. Klemm, T. Hattori, and K. Kadowaki, Study of the various shapes of mesas for tunable, coherent and continuous terahertz waves emission in intrinsic Josephson junctions  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ , The 8th International Symposium on Intrinsic Josephson Effects and Plasma Oscillations in High-Tc Superconductors, 2012.6.10-13, Cesme, Izmir, Turkey

(17) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Yamamoto, M. Sawamura, T. Kitamura, R. Nakayama, K. Ishida, H. Minami, T. Hattori, and K. Kadowaki, THz wave radiation in triangular mesa structures of cuprate superconductor Bi-2212 intrinsic Josephson junctions, 日本物理学会 第 67 回年次大会, 2012.3.24-27, 関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス

(18) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T.

Kashiwagi, H. Asai, T. Yamamoto, M. Sawamura, T. Kitamura, R. Nakayama, K. Ishida, H. Minami, T. Hattori, and K. Kadowaki, THz wave radiation from the triangular mesas in layered high-Tc superconductor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  intrinsic Josephson junctions, APS March Meeting 2012, 2012.2.27-3.2, Boston, USA

(19) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Yamamoto, M. Sawamura, T. Kitamura, R. Nakayama, K. Ishida, H. Minami, T. Hattori, and K. Kadowaki, THz wave generation from the triangular mesas in layered high temperature superconductor Bi-2212 IJJs, 第 19 回渦糸物理国内会議, 2011.12.7-9, 物材機構, つくば

(20) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, H. Asai, T. Yamamoto, M. Sawamura, T. Kitamura, R. Nakayama, H. Minami, T. Hattori, and K. Kadowaki, Terahertz wave emission from the triangular mesas in layered HTS  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  intrinsic Josephson junctions, The 6th East Asia Symposium on Superconductor Electronics, 2011.10.27-29, Yamagata

(21) T. Hattori, Two-dimensional terahertz time-domain spectroscopy of classical oscillators, 36th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, 2011.10.2-7, Houston, Texas, USA

(22) 青木克仁, 吉川弘樹, 白木賢太郎, 服部利明, リゾチーム水溶液のテラヘルツ分光, シンポジウム「テラヘルツ分光法の最先端 V ~バイオテラヘルツ分光~, 2011.9.28-29, パシフィコ横浜

(23) 服部利明, 古典振動子モデルによる 2 次元テラヘルツ時間領域分光, シンポジウム「テラヘルツ分光法の最先端 V ~バイオテラヘルツ分光~, 2011.9.28-29, パシフィコ横浜

(24) 田中大二郎, 服部利明, 金属針先端近傍のテラヘルツ近接場のイメージング, シンポジウム「テラヘルツ分光法の最先端 V ~バイオテラヘルツ分光~, 2011.9.28-29, パシフィコ横浜

(25) 服部利明, テラヘルツ非線形 2 次元時間領域分光の古典論, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011.9.21-24, 富山大学

(26) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, T. Yamamoto, R. Nakayama, M. Sawamura, T. Kitamura, T. Hattori, H. Minami, and K. Kadowaki, Study of the triangular geometry in mesa structures of Bi-2212 IJJs for THz emission, 日本物理

学会 2011 年秋季大会, 2011. 9. 21-24, 富山大学

(27) 服部利明, テラヘルツイメージング入門, 日本分光学会第 47 回夏期セミナー「テラヘルツ時間領域分光入門」, 2011. 9. 7, 幕張メッセ

(28) 桂佑輔, 浅井栄大, 門脇和男, 服部利明, ボウタイ型アンテナによる広帯域テラヘルツ近接場の電場増強, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 2011. 8. 29-9. 2, 山形大学小白川キャンパス

(29) K. Delfanazari, M. Tsujimoto, T. Kashiwagi, R. Nakayama, T. Kitamura, Sh. Hagino, M. Sawamura, T. Hattori, T. Yamamoto, H. Minami, and K. Kadowaki, THz Emission from a Triangular Mesa Structure of Bi-2212 IJJs, 26th International Conference on Low Temperature Physics, 2011. 8. 10-17, Beijing, China

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

服部 利明 (HATTORI TOSHIAKI)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：6 0 2 0 2 2 5 6