

# テラヘルツ波を用いたガラスの評価法の検討

秋田県立大学 システム科学技術学部 伊東良太

## Study on Evaluation Method of Glass Using Terahertz Wave

Ryota Ito

Faculty of Systems Science and Technology, Akita Prefectural University

テラヘルツ波は情報通信や非破壊検査など様々な分野で利用が検討されている。本研究では、ガラス材料の新たな評価法として、液晶位相制御デバイスを用いたテラヘルツ帯での位相計測法を検討した。テラヘルツ光源には連続波発振が可能な光励起型サブミリ波レーザーを使用した。実験の結果から、水素結合を有する液晶は2.5THzにおいて吸収異方性を示さないため、Xカット水晶の複屈折を精度よく計測できることを明らかにした。また、本研究では、反射型デバイスによる応答特性の改善にも取り組んだ。

Terahertz waves have attracted much attention mainly because of their potential application for broadband communications and non-destructive testing. In this study, we investigate a terahertz phase shifting interferometry by using liquid crystal phase shifter for future evaluation method of glass. The phase shifting interferometry is investigated by using an optically pumped gas laser system which can generate continuous wave terahertz waves. Since the hydrogen-bonded liquid crystal shows almost no dichroism at 2.5 THz, we have achieved precise measurement of the birefringence of X-cut crystalline quartz. We also studied a reflection type liquid crystal device to improve the speed of operation.

### 1. はじめに

テラヘルツ (THz) 波は周波数が  $10^{12}$  Hz 付近の電磁波であり、発生検出の難しさから他の周波数に比べて利用が進んでいない領域であった。しかし、発生・検出技術の進歩に伴い、情報通信、非破壊検査、医療など様々な分野で利用が検討されている<sup>1)</sup>。近年では、THz 技術の実用化に向けてこの周波数帯で動作する高機能な光学素子の必要性も高まっている。液晶は「配向秩序を有する」、「誘電率、屈折率、磁化率などに異方性を有する」、「電界や磁界などの外場に応答する」という特徴を持つ魅力的な材料であり、ディスプレイをはじめとした様々な電磁波制御デバイスに応用されている。また、液晶材料は THz 領域においても屈折率異方性を示す事が明らかになっており<sup>2)</sup>、今後 THz 帯での液晶材料の利用が期待される。我々はこれまで、THz 帯で動作する液晶デバイスに関する研究を行ってきた<sup>3-6)</sup>。さらに、液晶デバイスを用いた THz イメージング技術を提案し、THz 帯での液晶デバイスの有効性を実証した<sup>7)</sup>。しかし、THz 帯での液晶の吸収異方性の影響などにより、測定精度の向上が必要不可欠であった。そこで、本研究では、液晶を用いた THz 帯での位相計測システムの高精度化とそれらを用いたガラスの評価法の確立を目指した。

## 2. 実験方法

### 2.1 光励起型サブミリ波レーザーによる測定

THz 波の発生・検出が現時点において難しいこともあり、THz 帯の研究では、光源の獲得が非常に重要となっている。本研究では THz 光源として図 1 に示す光励起型サブミリ波レーザーを使用した。この光源は、励起用の CO<sub>2</sub> レーザーと THz 発振用のガスレーザーから構成されている。THz 発振には、電子のエネルギーレベルではなく分子の振動エネルギーが関与するため、電子速度の限界と電子の熱励起の影響により発振が困難となる THz 帯において高出力な連続発振が得られる。この装置は、発振周波数は飛び飛びになるが、現在普及している THz 時間領域分光装置とは桁違いにパワーが異なるだけでなく、偏光状態やビームプロファイルの測定が容易に行えるという利点がある。

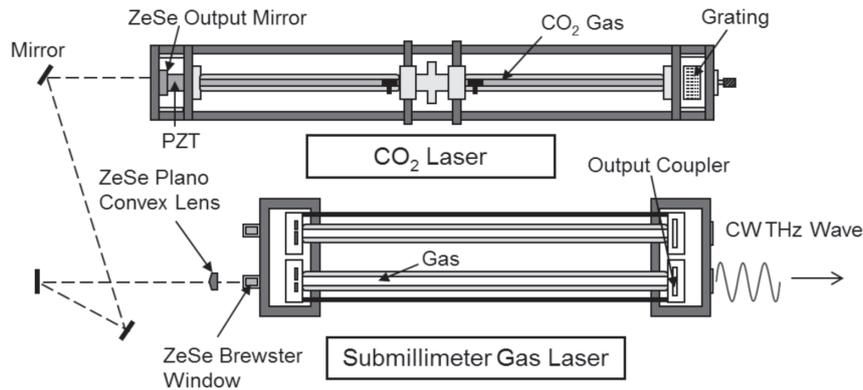


Figure. 1 Schematic diagram of optically pumped submillimeter gas laser.

### 2.2 液晶デバイスを用いた位相シフト干渉計測

高精度な複屈折計測の手法として、位相シフト干渉法が挙げられる。位相シフト干渉法では入射光の位相を変えながらサンプルを通過した光を測定することで、サンプルにおける位相の変化を高精度に計測することができる。また、4step による位相シフト干渉法においては、サンプルへの入射光の位相を  $\pi/2$ 、 $\pi$ 、 $3\pi/2$ 、 $2\pi$  と変化させて光強度を測定し、以下の式からサンプルにおける位相の変化を求めることができる<sup>8)</sup>。

$$I_1 = I' + I'' \left\{ 1 - \cos \left( \phi_{\text{sample}} + \frac{\pi}{2} \right) \right\} \quad (1)$$

$$I_2 = I' + I'' \left\{ 1 - \cos \left( \phi_{\text{sample}} + \pi \right) \right\} \quad (2)$$

$$I_3 = I' + I'' \left\{ 1 - \cos \left( \phi_{\text{sample}} + \frac{3\pi}{2} \right) \right\} \quad (3)$$

$$I_4 = I' + I'' \left\{ 1 - \cos \left( \phi_{\text{sample}} + 2\pi \right) \right\} \quad (4)$$

ここで、 $\phi_{\text{sample}}$  はサンプルによって生じる位相差、 $I'$ 、 $I''$  は測定系におけるノイズを示している。(1)~(4)式より、

$$\phi_{\text{sample}} = \tan^{-1} \left( \frac{I_1 - I_3}{I_2 - I_4} \right) \quad (5)$$

とり、4つの光強度の測定結果からサンプルで生じる位相差を求めることができる。こ

の時、ノイズ  $I, I'$  はキャンセルされるため、高精度な位相の測定が可能となる。また、サンプルの複屈折を  $\Delta n$ 、厚さを  $d$ 、測定波長を  $\lambda$  とすると、

$$\Delta n = \frac{\phi_{\text{sample}} \lambda}{2\pi d} \quad (6)$$

となるため、厚さがわかっているサンプルの場合には、複屈折の値を求めることができる。この測定では、正確な位相の変化を与える高精度な位相変調器が重要であり、我々はこれまでに、可視光領域で液晶デバイスを位相変調器として用いた位相シフト干渉法について報告してきた<sup>9)</sup>。液晶デバイスを用いた位相シフト干渉法では、光路に液晶デバイスを挿入するだけで位相計測が可能となるため簡単な実験系で測定が行えるというメリットがある。

本研究では、前節で示した高出力な THz 光源である光励起型サブミリ波レーザーを用いて、4ステップ法による位相シフト干渉計測を実現する。図2に光励起型サブミリ波レーザーによる位相シフト干渉システムの概略図を示す。図2に示すように、本システムは、2枚のワイヤグリッド偏光子と液晶デバイスによって構成される。また、サンプルは液晶デバイスの背後に置かれ、焦電検出器により透過する THz 波を検出する。また、本研究では、発振周波数を 2.5 THz として実験を行った。

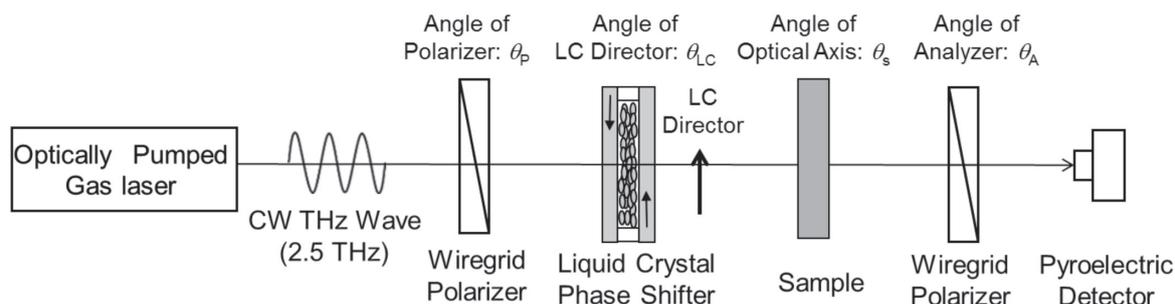


Figure. 2 Optics of the phase-shift interferometer.

### 3. 結果と考察

#### 3.1 水素結合を有する液晶を用いた位相変調デバイスの開発<sup>10,11)</sup>

液晶デバイスを用いた 4step による位相シフト干渉計測に先立ち、高性能な液晶位相変調デバイスの開発を行った。可視光で用いられる一般的な液晶材料は THz 帯の吸収特性が異方的 (分子長軸方向と短軸方向の吸収が異なる状態) であるなどデバイス実現に向けた課題もある。これまでの研究では、この吸収異方性が 4step による位相シフト干渉計測の精度悪化につながっている<sup>7)</sup>。そこで、本研究では、図3に示す水素結合を有する液晶に着目し、THz 帯で動作する位相変調デバイスを作製しその動作特性を評価した。

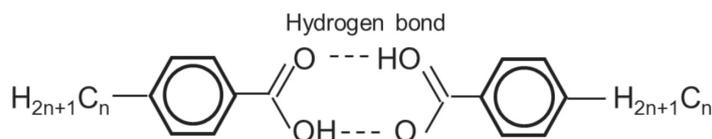


Figure. 3 Molecular structure of hydrogen-bonded liquid crystal.

図4に本研究で作製した液晶位相変調デバイスの構造を示す。液晶は液体のような流動

性を持つため、それらを利用する場合には何らかの容器(セル)構造が必要である。一般的な液晶ディスプレイでは、2枚のガラス基板を適当な大きさの絶縁スペーサーで保ったギャップ間に液晶材料が封入された構造が用いられる。可視光用のデバイスでは、ガラス基板とITO (Indium Tin Oxide)透明電極が用いられるが、THz波の透過率が低いため、本研究では、THz波透過率が高い水晶基板と有機導電性薄膜であるPEDOT/PSSによりセル構造を作製した。また、液晶デバイス内では、液晶分子の向き(配向方向)を基板表面に塗布された配向膜の表面処理によって制御可能である。本研究では、液晶ディスプレイ作製プロセスで一般的に用いられるラビング法により配向処理を行い、図4に示すようにセル内で液晶分子の長軸の方向(ダイレクター)が一様に分布するホモジニアス配向セルを作製した。液晶材料はTHz帯で水素結合を有する液晶(LC1)を使用し、液晶層の厚さは $800\mu\text{m}$ とした。また、比較のために、可視光で比較的複屈折の大きいE44液晶を用いたデバイスも作製した。ホモジニアス配向セルでは、入射する電磁波において、液晶分子の長軸に平行な方向の電界と垂直な方向の電界の位相差を電圧により制御することが可能になる。すなわち、液晶デバイスを透過した電磁波の偏光状態を電圧により制御することが可能となる。

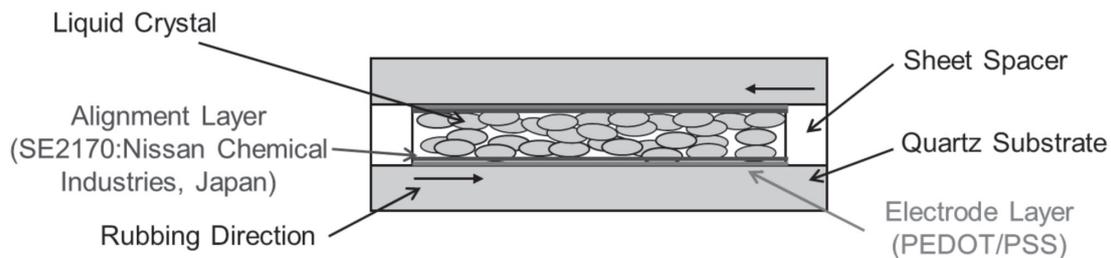


Figure. 4 Structure of liquid crystal phase shifter for terahertz operation.

液晶位相変調デバイスの位相変調特性の評価は、図2に示す測定系を用いて行った。ここでは、液晶デバイスのみの特性を評価するために、サンプルを置かない状態で測定を行っている。液晶分子の長軸方向(ダイレクター)は $\theta_{LC}=0^\circ$ となるように配置し、ワイヤーグリッド偏光子の角度を $\theta_P=45^\circ$ 、 $\theta_A=-45^\circ$ とした。この配置では、液晶デバイスを透過した電磁波の偏光状態の変化を透過率の変化として観測することが可能である。

図5に2.5THzで測定した液晶位相変調デバイスの透過強度の電圧依存性を示す。また、図5(a)はE44液晶を用いた場合の結果であり、図5(b)は水素結合を有する液晶LC1を用いた場合の結果である。図5(a)、(b)ともに、電圧の増加により透過率が変化していることがわかる。これは、液晶デバイスに印加した電圧により液晶分子の配向変化が起こり、それにともない液晶デバイス透過後のTHz波の偏光状態が変化していることを示している。

また、E44液晶は吸収異方性がある材料で、液晶の短軸方向の吸収が長軸方向に比べて大きいことがわかっている。このような材料の場合、電圧を印加して液晶が立ち上がるにつれて損失が増加していき、図5(a)に示すように、偏光変化に伴う透過率の振動に加えて、損失の増加による透過率の減少がみられる。一方、水素結合を有する液晶の場合、図5(b)のように、偏光状態の変化に伴う振動のみが観測されている。この結果は、水素結合を有する液晶では、吸収異方性がないため、電圧印加による配向の変化の際にデバイスの損失が変化しないことを意味している。また、この液晶位相変調デバイスの位相変調

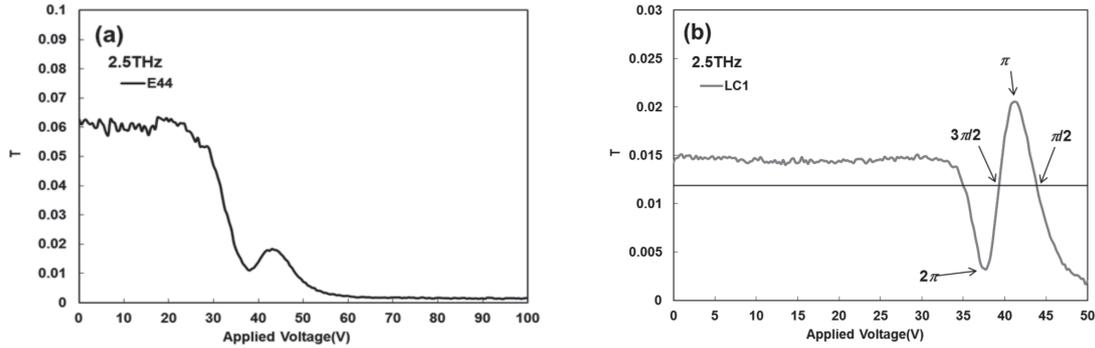


Figure. 5 Transmitted terahertz intensity of (a) E44 and (b) hydrogen-bonded liquid crystal (LC1) as a function of the applied voltage.

量は、図5(b)に示すように、0-50Vの印加電圧で、高電圧側の位相を基準とすると、一波長( $2\pi$ )以上の変調量が実現していると考えられる。

実験で得られた液晶位相変調デバイスの動作を考察するために、ジョーンズマトリクス法を用いて透過したTHz波の偏光状態のシミュレーションを行った。図6に液晶位相変調デバイスの位相差を変えた場合の透過波の偏光状態を示す。ここでは、液晶による位相変調量が(a)  $\pi/2$ 、(b)  $\pi$ 、(c)  $2\pi$ の条件で、液晶の損失が無い場合、E44液晶を用いた場合、水素結合を有する液晶を用いた場合の3通りの結果を示している。図6(a)に示す位相変調量が $\pi/2$ の条件では、液晶の吸収がない場合は円偏光が出力されるが、吸収の異方性を持つE44では、楕円偏光となっている。しかし、水素結合を有する液晶を用いた場合、液晶の吸収により電界は低くなるものの円偏光が得られている。図6(b)、(c)の位相変調量が $\pi$ 、 $2\pi$ の条件では、液晶の吸収がない場合、 $\pm 45$ 度傾いた直線偏光が出力されているが、吸収の異方性を持つE44では直線偏光の傾きが45度からずれている。しかし、水素結合を有する液晶を用いた場合、電界は低くなるものの $\pm 45$ 度の直線偏光が得られている。

以上の結果から、水素結合液晶を用いた液晶位相変調デバイスは、吸収異方性の影響を受けず偏光変換が可能であり、4stepによる位相シフト干渉計測への利用に適していると考えられる。

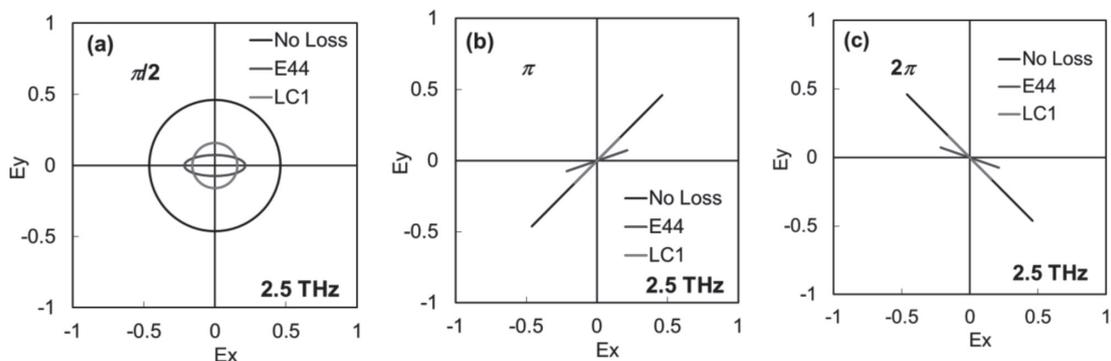


Figure. 6 Simulation results of the polarization conditions of a transmitted terahertz wave. The phase shift of the LC device was (a)  $\pi/2$ , (b)  $\pi$ , and (c)  $2\pi$ .

### 3.2 水素結合を有する液晶を用いた位相シフト干渉計測<sup>12)</sup>

前節の結果から、液晶位相変調デバイスに水素結合を有する液晶を用いることで、良好な位相制御特性を示すことが明らかになったため、それらを用いた位相シフト干渉計測を検討した。4stepによる位相シフト干渉計測は、図2に示す実験系を使用し、液晶位相変調デバイスには3.1節で示した水素結合を有する液晶を使用した。測定精度の確認のために、THz帯で複屈折をもつXカット水晶基板の測定を行った。水晶はTHz帯での透過率も高いことが知られており、この帯域の波長板として用いられることもある。本研究では、厚さ500 $\mu\text{m}$ の水晶基板を使用し、THz時間領域分光法による測定では、複屈折が0.05となっている。図7に2.5THzで行ったXカット水晶基板の測定結果を示す。本測定では、サンプルの前に置かれた液晶位相変調デバイスを用いて、電圧によりサンプルへの入射光の位相をコントロールしている。図7では、グラフの横軸は液晶位相変調デバイスに印加した電圧(VLC)であり、縦軸は図2の測定系におけるTHz波の透過率となっている。また、電圧印加前の液晶の光学軸を $\theta_{LC}=0^\circ$ となるように配置し、ワイヤグリッド偏光子の角度を $\theta_P=45^\circ$ 、 $\theta_A=-45^\circ$ 、Xカット水晶基板の光学軸は $\theta_S=90^\circ$ としている。

図7では、液晶デバイスによる位相変化量を求めるために、液晶位相変調デバイスの特性も重ねて示しており、サンプルへの入射光の位相が $\pi/2$ 、 $\pi$ 、 $3\pi/2$ 、 $2\pi$ となるTHz強度( $I_1\sim I_4$ )は図7に示す電圧となる。表1には図7から求めた4つのTHz強度( $I_1\sim I_4$ )と(5)、(6)式から求めたXカット水晶基板で生じる位相差と複屈折の値を示している。ここでは、液晶デバイスと水晶基板の光学軸の関係から位相差と複屈折が負の値として計算されているが、THz時間領域分光法で測定したXカット水晶基板の値に近い値が得られている。また、E44液晶を使用した位相シフト干渉計測<sup>7)</sup>に比べ著しく測定精度の向上

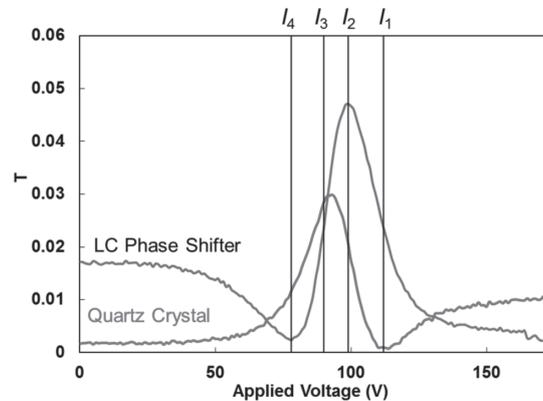


Figure. 7 Experimental results of THz transmittance by changing applied voltage to the LC phase shifter without and with sample at 2.5 THz.

Table 1 Four-step measurement result of X-cut crystalline quartz at 2.5 THz.

$I_i$	$V_{LC}$ (V)	Without Sample	X-cut Quartz Crystal ( $d=500\mu\text{m}$ )		
		$T$	$T$	$\phi$ (rad)	$\Delta n$
$I_1$	112	0.024	0.001	-1.256	-0.047
$I_2$	99	0.047	0.021		
$I_3$	90	0.024	0.028		
$I_4$	78	0.002	0.012		

みられ、位相シフト干渉法での水素結合を有する液晶の利用の有効性が確認された。

### 3.3 反射型デバイスの試作と動作特性の評価

THz 帯での液晶デバイスの動作速度は、可視光に比べ遅くなる傾向があり、位相シフト干渉法の測定速度にも大きく影響する。現時点では、液晶デバイスの動作時間の関係から、1回の測定後に5分程度時間を空けないと次の測定ができない状況であり、液晶デバイスの高速化は必要不可欠である。

そこで、反射型のデバイス構造を導入し、液晶デバイスの動作の高速化を試みた。液晶デバイスの動作速度は液晶層の厚さの2乗に比例するため、液晶層が半分となる反射型のデバイスでは、大幅な動作特性の改善が期待される。

図8にTHz帯で動作する反射型液晶デバイスの構造を示す。3.1節で示した透過型のデバイスと同様に、THz波透過率が高い水晶基板と有機導電性薄膜であるPEDOT/PSSによりセル構造を作製し、液晶の配向には配向膜を用いている。反射型デバイスでは、反射層としてTHz帯で反射率の高い金薄膜が図8の下側の基板に導入されている。本研究では、反射層となるAu薄膜をスパッタ装置(SC-701Mk II、サンヨー電子株式会社)を用いて形成し、液晶材料は水素結合型の液晶(LC1)を使用した。

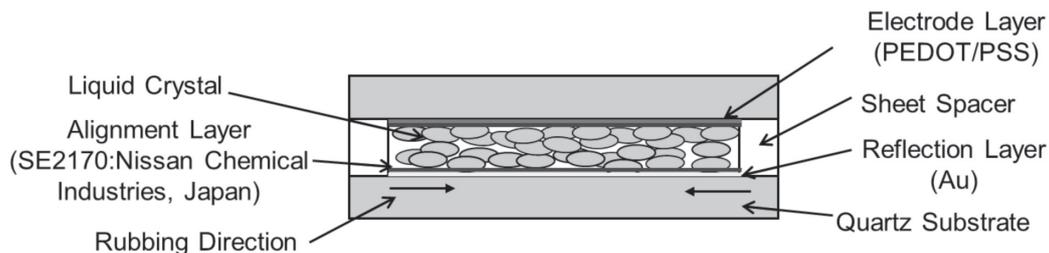


Figure. 8 Structure of reflection type liquid crystal phase shifter for terahertz operation.

THz帯で動作する反射型液晶デバイスの動作特性の評価は、図9に示す実験系を用いて行った。THz光源には光励起型サブミリ波レーザーを利用し、 $\lambda/4$ 波長板を用いてデバイスへの入射波を円偏光とした。また、図9に示すように複数のAuミラーにより反射型液晶デバイスへTHz波を導入し、反射したTHz波を焦電検出器で検出した。また、デバイスからの反射波の偏光状態を調べるために、検出器の手前にワイヤグリッド偏光子(検光子)を配置している。

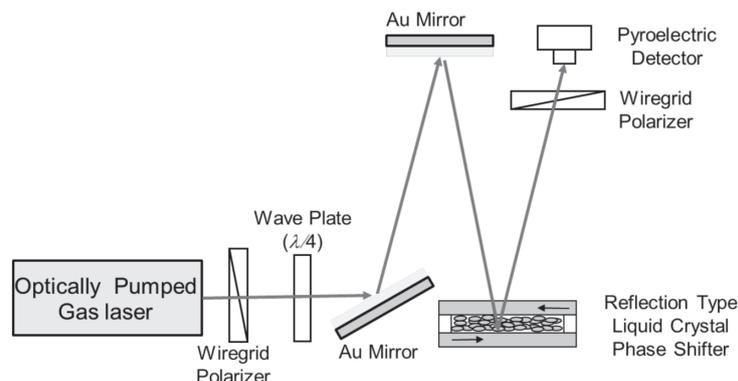


Figure. 9 Optics of the reflection measurements.

図 10 に 2.5THz で測定した反射型液晶デバイスの動作特性を示す。この測定では、検光子の角度を横軸とし、透過した THz 波の強度を縦軸としてプロットしている。また、比較のために、入射波の偏光状態 ( $\lambda/4$  板直後の状態) もあわせて示している。本測定では、入射波を円偏光としているが、図 10 の入射波のデータでは強度の振動が見られる。これは、入射波が楕円偏光であることを示している。一方、液晶デバイスで反射後の THz 強度は、入射波とは明らかに異なっており、液晶による位相変調が起こっているものと考えられる。現時点では、位相変調量の見積もりや電圧印加による応答特性の測定には至っていないが、このデバイスでの動作速度は透過型のデバイスに比べ早いことが予想される。

今後は、反射型デバイスの位相変調量および動作速度の測定を行い、位相シフト干渉法への導入を目指す予定である。

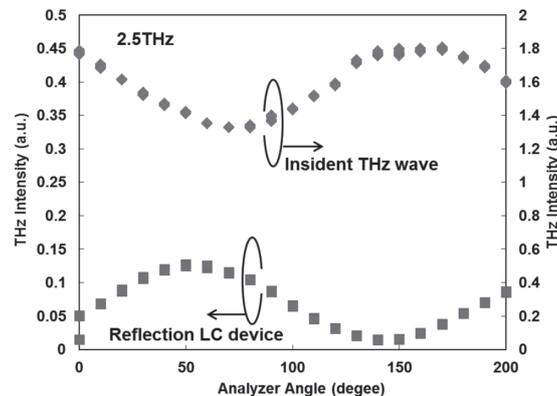


Fig. 10 Transmitted terahertz intensity of a reflection type LC device as a function of the analyzer angle.

#### 4. 結論

本研究では、液晶を用いた THz 帯での位相シフト干渉計測の高精度化とそれらを用いたガラスの評価法の確立を目指し実験を行った。実験の結果、水素結合を有する液晶を導入した液晶位相変調デバイスは、吸収異方性の影響を受けず偏光変換が可能であることが明らかになった。また、水素結合液晶を用いて位相シフト干渉計測を行ったところ、THz 時間領域分光法で測定した X カット水晶基板の複屈折に近い値が得られた。この結果は、E44 液晶を使用した位相シフト干渉計測<sup>7)</sup>に比べ著しく測定精度が向上しており、位相シフト干渉法での水素結合液晶の有効性が明らかになった。また、応答速度の改善を目指し、反射型液晶デバイスの作製とその特性評価を行った。作製した反射型液晶デバイスからの反射波は、入射波と明らかに異なっており、液晶による位相変調が起こっていることが明らかになった。今後は、反射型デバイスの位相変調量および動作速度の測定を行い、位相シフト干渉法への導入を目指す予定である。本研究における位相計測法は、THz 光源の高い出力と位相計測の精度を考慮するとガラス材料の評価にも有効であると考えられる。

#### 5. 謝辞

本研究は、平成 28 年度日本板硝子工学助成会の研究助成を受けて行ったものである。同助成会に心より感謝いたします。

## 6. 参考文献

- 1) M. Tonouchi, *Nat. Photonics* **1** 97 (2007).
- 2) T. Nose, et al., *Appl. Opt.* **36** 6383 (1997).
- 3) R. Ito, M. Honma, T. Nozokido, T. Nose, "Terahertz liquid crystal grating fabricated by using microrubbing process", *Proceedings of IDW* (2013) 223-224.
- 4) T. Kumagai, R. Ito, K. Takeya, H. Yoshida, H. Kubo, A. Fujii, T. Nose, M. Tonouchi and M. Ozaki "Tunable Terahertz Filter Using an Etalon with a Nematic Liquid Crystal Layer and its response speed" *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, vol. 561, pp. 82-88, 2012
- 5) R. Ito, S. Yanagihara, K. Ito, T. Watanabe, T. Nose and M. Honma,, "Basic Performance of Refractive Index Measurement Method for LC Materials in Super High Frequency Region by Using Coplanar Wave Guide", *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 543 (2011) 92-100
- 6) R. Ito, T. Nose, M. Ozaki, K. Takeya and M. Tonouchi, "THz Wave Transmission Properties of LC Composite Membrane Films" *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 516 (2010) 144-151
- 7) R. Ito, T. Takahashi, M. Honma, T. Nose, "Introduction of liquid crystal device into THz phase imaging" *Proc. SPIE*, 9362 (2015)
- 8) M. Totzeck, and H. J. Tiziani, "Phase-shifting polarization interferometry for microstructure linewidth measurement," *Opt. Lett.*, 24, 294 (1999).
- 9) T. Nose, Y. Terui, M. Mizumoto, K. Okano, H. Muraguchi, N. Ozaki, R. Ito, and M. Honma, "Microscopic birefringence imaging by phase-shift interferometry using a liquid crystal phase shifter", *Proc. of SPIE*. 7414. 741408 (2009).
- 10) R. Ito, et al., The 27<sup>th</sup> ILCC, 2-D-5, (2018) Kyoto.
- 11) R. Ito, M. Honma, and T. Nose, "Electrically Tunable Hydrogen-Bonded Liquid Crystal Phase Control Device," *Applied Sciences*, 8, 2478 (2018).
- 12) 投稿準備中