

# 物性情報抽出のための偏光解析手法と応用に関する研究

2018年3月

銀屋 真

徳島大学大学院先端技術科学教育部  
知的力学システム工学専攻  
機械創造システム工学コース

## 目次

1 章 序論	1
1.1 研究の背景	1
1.2 偏光による物質の異方性解析	3
1.3 研究の目的と意義	7
1.4 論文の構成	8
参考文献	9
2 章 物質の分極と偏光の相互作用	11
2.1 強誘電体	11
2.1.1 強誘電体の分極	12
2.1.2 グレイン構造と分域構造	14
2.1.3 電気光学効果	17
2.2 偏光の定量的表現方法	20
2.2.1 光の偏光	20
2.2.2 ストークスペクトル	22
2.3 強誘電体の偏光特性	23
2.3.1 強誘電体の偏光特性	23
2.3.2 グレイン・分域構造による偏光解消	25
2.3.3 ミュラー行列による偏光特性の定量化	26
2.3.4 ミュラー行列再構成	27
2.3.5 強誘電体の偏光解析による評価法	32
参考文献	33
3 章 ミュラー行列計測による強誘電体の光学特性評価	34
3.1 緒言	34
3.2 2重回転位相子型偏光計	34
3.2.1 ミュラー行列測定原理	35
3.2.2 キャリブレーション原理	39
3.3 装置構成および評価	43
3.3.1 装置の構成と測定手順	43
3.3.2 精度検定	45
3.4 測定結果および考察	47

3.4.1	PLZTの全偏光特性の電場依存性	48
3.4.2	複屈折性のメモリ効果	52
3.5	結言	54
	参考文献	56
<b>4章</b>	<b>ミュラー行列顕微鏡による強誘電体の分極構造観察</b>	<b>57</b>
4.1	緒言	57
4.2	二重回転位相子型偏光顕微鏡	57
4.3	装置構成および評価	58
4.3.1	装置の構成と測定手順	59
4.3.2	精度検定	60
4.4	測定結果および考察	62
4.5	結言	66
	参考文献	67
<b>5章</b>	<b>幾何学的位相の非線形挙動を用いた偏光計測の高感度化</b>	<b>68</b>
5.1	緒言	68
5.2	原理	68
5.2.1	変形マルチチャンネルフーリエ分光器 (modified MC-FTS)	68
5.2.2	幾何学的位相 (GP; geometric phase) の非線形挙動	70
5.2.3	幾何学的位相のジョーンズ行列計算	71
5.2.4	旋光角の波長依存性 $\alpha(\lambda)$ の推定手順	73
5.3	数値シミュレーション	75
5.3.1	装置のパラメータの相互依存性	76
5.3.2	感度評価および最適パラメータの設計方法	77
5.4	測定結果および考察	79
5.5	結言	80
	参考文献	81
<b>6章</b>	<b>総括</b>	<b>86</b>

研究業績

謝辞



# 1 章 序論

## 1.1 研究の背景

本論文のテーマは「物性情報抽出のための偏光解析手法と応用に関する研究」である。ここではそのターゲットを特に強誘電体結晶に絞り、その異方性の印加電圧依存性をミューラー偏光行列の手法を用いて解析した結果と手法の提案について、さらにはそれを二次元顕微鏡下での測定に適用した結果について述べる。また、それとは別途に、透明試料の複屈折の波長依存性、すなわち旋光分散を、サバル板を挿入したマルチチャンネルフーリエ分光器を構築し、偏光に関する幾何学的位相と弱測定の方法を用いて高精度に測定する手法を提案した結果について述べる。

さて、偏光解析法は、1887年に Paul Drude によって考案されたエリプソメトリを端緒とする[1]。当初は金属などの光学定数を測定する手法としてスタートしたが、その後の半世紀あまりはさほど顕著な報告はなかった。しかし、1940年代以降の真空蒸着による薄膜作製の実用化とともに再び注目を集めるようになった。その当時は薄膜の生成過程の詳細に関して不明な点が多く、ナノメートルオーダーで成長する薄膜の様子を観察できる手法としてエリプソメトリが見直されたためが一因であろう。そうは言っても1960年代頃までは限られた研究者らの範疇にある手法であり、年間の発表論文数も50編を超えない程度であった[2, 3]。それが1975年に Aspnes らによって分光手法との組み合わせ、すなわち分光エリプソメトリによる高精度化と測定の自動化が示されたことを契機として、広く用いられるようになった[4]。1980年以降は、半導体産業の隆盛にともなう、偏光解析法は半導体基板表面の解析や評価の常套手段となり、非接触・非破壊かつ高精度に光学定数や膜厚を計測できる代表的手法として認知されるようになった。半導体分野以外でも、有機/バイオ材料の評価やナノ構造体の解析、病変組織の診断など様々な分野に活用されるようになった。現在では、偏光解析法に関する発表論文数は年間600編を超えており、今後もさらにその応用分野は広がっていくと思われる。このような流れを受けて、本研究では、機能性材料の一つとして注目されている強誘電体材料の評価に偏光解析法を導入する。著者が知る限り、これまでにこの分野でのそのような試みは殆どない。

強誘電体は誘電体の一種であり、図 1.1 にその分類を示す[5]。誘電体の中で、応力に対して電場を生じさせる「圧電効果」を持つグループが圧電体と呼ばれる。圧電体の中には応力だけでなく熱によっても電場を生じさせる「焦電効果」を持つ材料があり、そのグループを焦電体と呼ぶ。これら圧電効果や焦電効果は、誘電体の単位格子を構成するイオンの重心が正と負で一致せずに電氣的な偏りを持つことに起因して発生する効果である。この電氣的な偏りを外部から電場によって制御することができ、すなわち「分極反転」させることができ、それによって圧電効果や焦電効果の強さを制御できる材料のことを強誘電体と呼ぶ。そのため、強誘電体は誘電体の中で最も特異な性質を持つグループであるといえる。強誘電体は、圧電効果や焦電効果によって熱や応力に対して電場を生じさせるなどの電氣的に顕著な応答を示す。また、これらの効果には対応する逆効果も存在し、強誘電体への電場の印加によって熱や応力を発生させられる。つまり、強誘電体には材料自体に「アクチュエーティング」機能と「センシング」機能が同時に備わっている。そのため、20世紀初頭の強誘電体の発見時から、振動子などのデバイス開発が積極的に行われて

きた[6, 7]. その結果, 現在ではセラミックコンデンサなどの電子回路部品, 赤外線センサや加速度センサ, 圧電振動子や圧電アクチュエータ, 不揮発性メモリなど, 様々な機械やデバイスの基本的な構成要素の役割を担うようになっており, 我々の生活に不可欠なものとなっている.

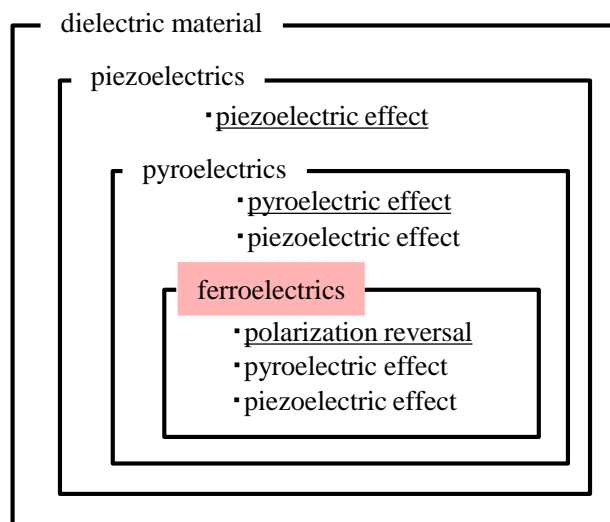


Fig. 1.1 Hierarchical classification of dielectric materials.

新たな強誘電体が次々と開発されていくなかで, 特に透光性に優れる強誘電体が現れた. たとえば $(\text{Pb, La})(\text{Zr, Ti})\text{O}_3$ [8, 9]や $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ [10]などの組成を有するものである. これらの強誘電体に電場を印加すると, その方向に応じて屈折率が変化するという「電気光学効果」が発生する. そのような電気光学効果を利用すれば, 光スイッチ, 光シャッタ, 光通信用素子などの電気光学デバイスとして活用できる[11-13]. 液晶デバイスと比較して一般に応答速度が速く, 光の透過率のコントラスト比が高く, 高い光パワー密度にも耐えられるという点で優れている. したがって, 可変焦点レンズなどのような高機能光学デバイスの開発も行われるようになった[14, 15]. しかし, 高品質で光学的に均一な強誘電体を得るのは思いのほか難しく, 材料としての特性の改善や生産コストの削減など多くの課題を残している.

強誘電体を用いた光学デバイス開発における課題の一つとして, 材料や作製したデバイスの光学特性の簡便で精密な評価法の開発が挙げられる. 図 1.2 に, 強誘電体の光学特性の評価法をまとめた. 古くから利用されているのは「静電容量測定法」である. これは「ソーヤ・タワー法」としてよく知られているが [16], 静電容量を測定し, それから算出した誘電率から光学特性を推定している. しかし, 光学デバイスとしての広範な応用を考える場合には必ずしも万能とはいえない. 例えば, 試料が大きい場合や試料の加熱時にはソーヤ・タワー法は採用しにくい. したがって, 光を用いた特性評価も必要である. 簡単な評価法としては, アッペ屈折率計などを用いた屈折率の測定が行われており, 電気光学効果による印加電場に対する屈折率の変化などが報告されている[8, 10]. しかし, 非中心対称の結晶構造を有する強誘電体は結晶軸方位によって屈折率が異なる光学的異方体であり, 光学特性の異方性つまり偏光特性を考慮せずに屈折率を測定して

評価することは測定の精度と正確性に欠ける．そのため，光学特性評価には偏光計測が最も妥当であるとして，偏光顕微鏡やエリプソメトリなどを用いて偏光特性の一つである複屈折性を測定している報告もある[17-20]．しかし，強誘電体を用いた光学デバイスでは作製の容易さから強誘電性セラミックスが多用されているため，そのような多結晶材料では材料の不均一性によって透過光の偏光状態の一部がランダム偏光となってしまう．つまり，偏光解消が生じてしまう．しかし，一般に普及している偏光顕微鏡やエリプソメトリなどの偏光計測手法ではそのような状況での偏光特性を精度よく測定することはできない．偏光解消が生じる試料の偏光特性を精度よく測定する手法としては「ミュラー行列偏光計」が知られているが[21]，強誘電体の光学特性の評価に用いられた例は筆者が知る限りない．こうした強誘電体の光学特性に対する認識の不足と評価技術の遅れが強誘電体を用いた光学デバイスの高性能化を遅らせている一因になっているとも思われる．以上のことを踏まえ，本研究では強誘電体デバイスの光学特性評価に適した高精度偏光解析法を提案する．

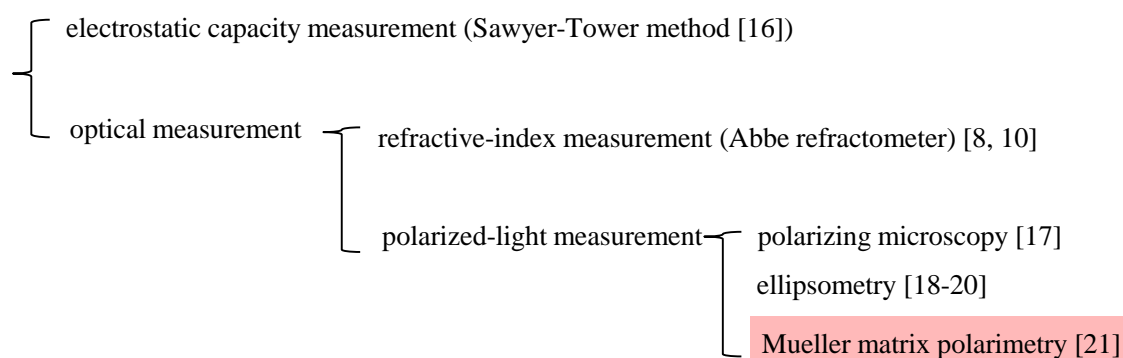


Fig. 1.2 Classification of the evaluation methods of optical characteristics of ferroelectrics.

## 1.2 偏光による物質の異方性解析

偏光とは光の電場振動の時間の関数としての軌跡，もしくはその状態のことを指す．そして，試料を透過もしくは反射したときの偏光状態の入射光のそれに対する振幅と位相の変化から試料の応答関数ともいえる「偏光特性」を測定し，必要に応じて対象物の光学モデルを仮定しつつ検証を行う．それが偏光解析法である[21]．偏光解析法の利点は，

- (1) 光の透過や反射による偏光状態の変化を測定するため，光が透過もしくは反射するような試料であれば，どのような環境下においても非破壊かつ非接触での計測が可能となる．
- (2) 光の電場の直交する 2 つの振動成分間での相対的な振幅と位相の変化を測定するため，測定光に対して光学的に異方性のある現象以外の影響を受けない．

の2点である。偏光解析法が物性計測分野において高精度な測定手法として評価されるのは、(2)に負うところが大きい。すなわち、外乱などの影響を受けにくく、試料の異方性に関する情報のみを抽出し易いためである。

偏光解析法の手法は、図 1.3 に示すように 2 種類に大別できる。光の電場が試料で受ける影響を直接記述できるジョーンズ偏光行列を用いる「エリプソメトリ法」と、光の電場と試料で受ける影響をそれぞれ時空間的に平均処理したミュラー偏光行列を用いる「ミュラー行列偏光計を用いる方法」である。このうち光の電場を直接扱うジョーンズ行列を用いる手法、すなわちエリプソメトリ法が直感的にわかり易く、数式上でも取り扱い易い。また、光学モデルとの対応も直観的である。しかし、1つの光波のみに着目すればそれは常にジョーンズ行列の表記に従うのであるが、実際の測定では1つの光波だけを測定することはなく、必ず時空間的に平均された値を測定することになる。したがって、光源の偏光状態や試料の偏光特性に時空間的なゆらぎがあると、測定結果はもはやジョーンズ行列で表記できなくなる。それに対してミュラー偏光行列ではそのような時空間的なゆらぎから生じる偏光解消を表現できる。本研究で対象とする強誘電体は、まさしくミュラー行列で取り扱うべき試料である。そのような理由でミュラー行列偏光計を構築することとした。

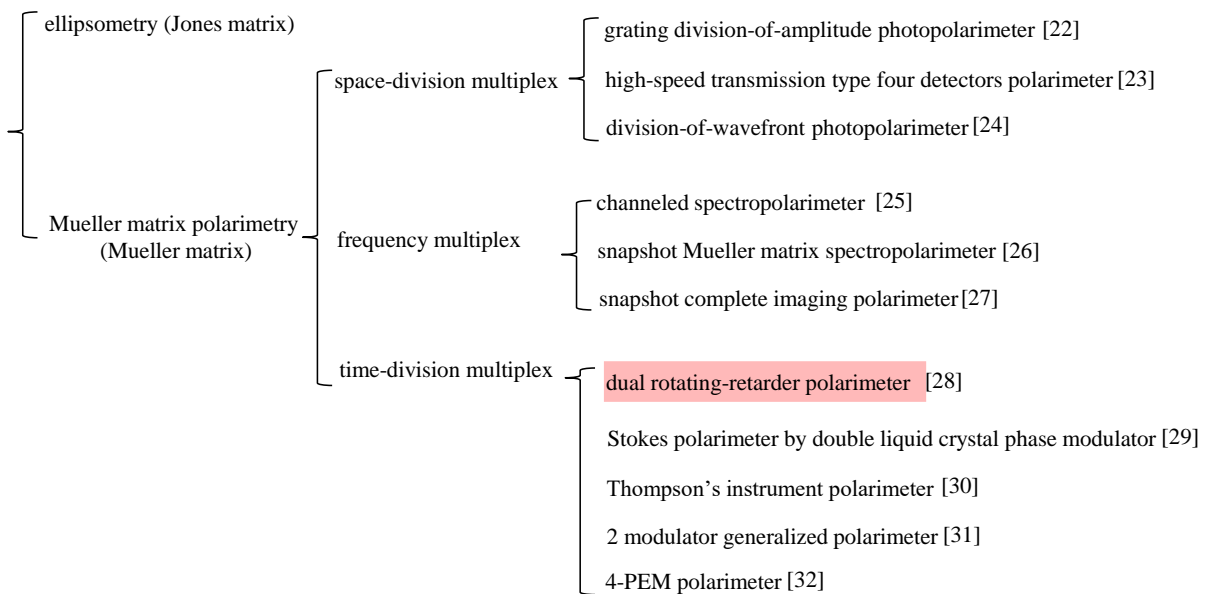


Fig. 1.3 Classification of the polarized-light measurement methods.

ミュラー偏光行列は  $4 \times 4$  のサイズの行列で、16個の要素から成る。試料のミュラー行列の16個の要素を決定するには、測定のために何らかの偏光制御素子を使って入出射光の偏光状態を時間的もしくは空間的に変調させ、複数個の測定条件での光強度測定によって情報量を増やす必要がある。時間軸を区切って条件を変えながら測定を繰り返す「時間分割多重」測定が古くから行われているが、近年では、「空間分割多重」や「波長分割多重」を利用した測定法も提案されてい



る。空間分割多重測定では、回折格子やビームスプリッタで測定光を分割してそれぞれの光路に偏光素子と検出器を設置して解析する G-DOAP; grating division-of amplitude photopolarimeter [22] や反射型多板検出法[23], アレイ状になった特殊な偏光光学素子を用いて測定光に空間的な偏光変調を施して 2 次元光検出器で検出する波面分割法[24]などがある。波長分割多重測定には、高次位相子の強い波長分散を利用して波長方向に偏光変調をかけて分光器で検出するチャンネル分光偏光計測法がある[25]。1 ショットでミュラー行列のすべての要素を決定できる snapshot Mueller matrix spectropolarimeter や二重回折結像系を組み合わせることで二次元空間分布計測を可能にしたスナップショット撮像偏光計なども報告されている[26-27]。空間分割多重測定および波長分割多重測定は時間分割多重測定に比べて測定の高速度化が達成でき、さらなる高精度化や多波長同時計測などの点で期待できるが未だに研究的なアプローチの側面が強い。空間分割多重測定では、ミュラー行列の全ての要素を決定するためには非常に多く光路や波面を分割する必要があり、それを可能とする光学系は未だ報告されていない。波長分割多重測定となるチャンネル分光偏光計測法では、微細なキャリアを持つチャンネルスペクトルの測定のために高分解能な分光器が必要となるため、分光器の応答速度という点で時間分割多重測定に対して絶対的に優位であるとは必ずしもいえず、実装上の制約が大きい。以上の理由から、時間分割多重以外の計測法は完全な実用化には至っていない。時間分割多重測定の範疇に入る従来のミュラー行列計測では、偏光制御素子の性能が測定系全体の特性を左右するため、偏光素子をモータによって機械的に回転させる回転位相子法や、高精度なポッケルスセルや液晶セル、光弾性変調器(PEM)など様々な偏光制御素子を用いる手法が提案されてきた[28-32]。その中でも特に「PEM を用いる方法」と「回転位相子法」が一般的に用いられてきた。PEM は変調速度が速いため測定時間が短時間で済む反面、素子材料の問題から測定面で均一な偏光状態を得ることが難しく、点計測になってしまいがちである。一方、回転位相子法はこの中では最も古い手法であるが、偏光素子の回転角の制御精度で測定精度が決まるため、比較的安価で高精度な測定装置を作製し易い。高精度化のためのキャリブレーション法が提案されるに至って、実用化もかなり進んできている。以上の理由から、本研究では、回転位相子法の中でも単一測定ですべてのミュラー行列の要素を決定できる「2 重回転位相子型偏光計」を採用した[28]。

2 重回転位相子型偏光計は、顕微鏡下に容易に構築できるため、微小領域の偏光特性の分布計測が可能である。そのため、強誘電体の分極と偏光の相互作用（第 2 章で詳述する「分域構造」）を可視化できると考えられる。分域構造は強誘電体の材料特性を決定付けるに当たって最も重要な事項の一つであるため、これまでにそれを観察するための様々な手法が提案されてきた。分域構造の主な観察法の分類を図 1.4 に示す。大きくは、分極の空間的な分布を直接観察する手法とソーヤ・タワー法によって間接的に調べる方法に分けられる。ソーヤ・タワー法では、電場の印加に伴う強誘電体の静電容量の変化が分域構造の種類によって異なることを利用して、電場の印加に対する静電容量の履歴曲線を取得して試料の分域構造を推定する。試料に電極を付けて静電容量の変化を測定するだけのため、最も簡便な手法として広く用いられている。一方、直接観察する手法としては、エッチング法や透過型電子顕微鏡(TEM; transmission electron microscopy), 圧

電応答顕微鏡(PFM; piezoresponse force microscopy), 走査型非線型誘電率顕微鏡(SNDM; scanning Nonlinear Dielectric Microscopy)を用いる方法などが知られている[33-36]. それらのうち最も簡単なエッチング法は, 腐食液による腐食速度が分域によって異なる事実を利用して, 腐食によって生じる試料表面の凹凸から分域構造を可視化させる. TEMでは, 入射電子線に対する強誘電体の結晶方位を調節することで, 分域構造の種類によっては分域構造ごとにコントラストを付けて観察することができる. PFMとSNDMは, 原子間力顕微鏡の探針と試料の間に交流電場を印加し, 試料の圧電効果による振動や静電容量の変化をそれぞれ探針で読み取ることで分域構造を可視化する. エッチング法は言うまでもなく破壊的な観察手法であるが, それ以外の手法でも観察するためには専用の加工を施した試料を用意する必要がある. そのため, 作製したデバイスの分域構造を直接観察することや, ましてや動作中のデバイスの分域構造の変化をそのまま観察するということは非常に難しい.

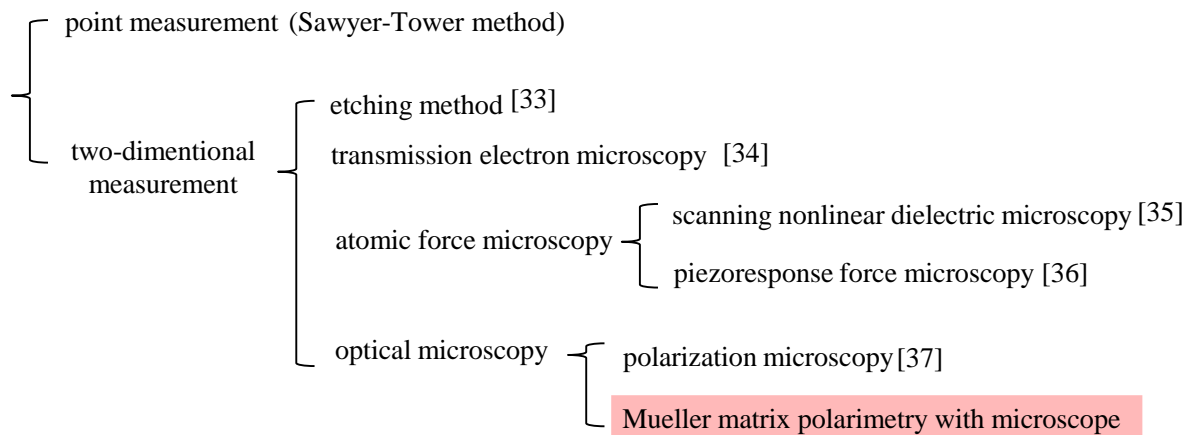


Fig. 1.4 Classification of the evaluation methods for electric polarization of ferroelectric ceramics.

この難点に対し, 電場印加中の分域構造の観察法として偏光顕微鏡を用いることが提案された. 強誘電体は自発分極によって屈折率の異方性を持つため, 分域ごとにおのずと異なる複屈折性を示す. そのため, 一般的な偏光顕微鏡でも光さえ透過すれば非破壊で駆動中のデバイスの分域構造の直接観察が可能となる[37]. しかし, 繰り返し述べたように, 偏光特性に空間的な分布があると偏光解消が生じるため, ミリメートルオーダーの非常に大きな分域構造でなければ観察に十分なコントラストが得られず, 現在ではあまり用いられなくなった. 以上のような背景で, 本研究では, ミュラー偏光行列を用いた偏光測定光学系を透過型顕微鏡に導入し, ミュラー行列の再構成によって偏光解消の影響を取り除いた複屈折性に関する情報取得を可能にするシステムの構築を試みた. それによって, 強誘電体のマイクロな分域構造の電場依存性を観察できることを初めて提案する.

### 1.3 研究の目的と意義

本研究では、強誘電体の評価に偏光解析法を適用した。すなわち、光学的に異方性のある現象を非破壊・非接触での計測が可能であるという偏光測定の利点を生かし、従来の手法では評価が困難であった材料や現象の評価法を開発することを目的とした。研究の骨子は、偏光解消が生じる強誘電体の偏光特性をミュラー行列計測によって測定し、測定したミュラー行列の再構成によって強誘電体の分極に関連の深い偏光特性を特定して評価することにある。これを本研究では、「(1)光学デバイス応用に向けた強誘電体の光学特性評価法の開発」および「(2)強誘電体の分域構造観察法の開発」という2つの視点で行った。

(1)の背景については、既に1.1節で述べた。すなわち、従来の強誘電体の光学特性評価は強誘電体の光学的異方性や偏光特性の空間分布によって生じる偏光解消が考慮されていないため、精度と正確性に欠けていた。それが強誘電体を用いた光学デバイスの高性能化を阻む要因の一つとなっていた。そこで試料のミュラー行列を測定することを提案する。測定したミュラー行列は偏光解消を含む試料の偏光に関する全ての光学的な応答を表しており、少なくとも偏光に関する光学特性はこれによって全て得られる。さらに、ミュラー行列の再構成によって、従来の偏光顕微鏡やエリプソメトリによる測定よりも高精度で複屈折情報が取得できることを示す。

(2)の観点を挙げた理由は、強誘電体の材料特性を把握するために最も重要な要素の一つが分極の空間的な分布、すなわち分域構造であるからである。一般的に用いられているTEMやPFMなどの分域構造の観察法は、前節で述べたように観察用に処理した専用の試料を必要とするため、作製したデバイスの分域構造を直接観察することや、ましてや動作中のデバイスの分域構造の変化をそのまま観察することは非常に難しい。これに対し、偏光解析法は測定光が被測定試料を透過もしくは反射すれば適用可能であるため、新たな観察法となる可能性がある。最終的に、強誘電体のミクロな分域構造の電場依存性が観察できることを初めて提案する。

本論文では、偏光解析法を適用した強誘電体の評価法としてこの2点を提案したが、これらの方法を突き詰めていくと最終的には偏光特性の測定感度が実用上のボトルネックとなる。特に分域構造の観察では、試料の微小な領域からの透過光の微小な偏光状態の変化を検出する必要がある。空間分解能を上げるとその状況はさらに厳しくなる。一方で、偏光以外の測定変数を新たに導入して情報量を増やすという方向性も考えられる。例えば波長情報に着目し、偏光特性の波長依存性も調査対象となり得る。そこで、ここでの測定対象の強誘電体から少し視野を拡げて、測定手法自体の見直しを行った。そこで着目したのが、「幾何学的位相を利用した偏光計測における測定感度の向上法」である。これは、偏光干渉に関する幾何学的位相と弱測定概念を用いて偏光状態を高精度に測定する手法である。その詳細は第5章で記述する。強誘電体の評価法としての位置づけは未着手で手法の提案に留まるが、偏光特性の一つである旋光性の波長分散計測の精度向上についていくらかの実験的検証を行った。

## 1.4 論文の構成

本論文は「物性情報抽出のための偏光解析手法と応用に関する研究」と題して6章で構成されている。

第1章では研究の背景と目的を述べた。はじめに、偏光計測の発展の歴史を振り返ることで、偏光解析法が必要とされる分野を提示し、現在は応用研究が主流となっていることを述べた。また、強誘電体は優れた材料であることを述べた。そして、現在では様々な分野で幅広く用いられているが、その評価法として偏光解析法を用いた例が非常に少ないことを指摘した。また、偏光解析法を適用した場合に考えられる利点を明示した。

第2章では、強誘電体の評価に偏光解析法を適用する上で必要となる「強誘電体の分極と偏光の相互作用」について詳述した。まず、強誘電体の特性を決定する分極とその構造について述べ、その構造中を透過する光の変化が偏光特性として現れることを述べた。また、それを定量的に扱う手法としてのミュラー偏光行列について説明し、その解析手法としてミュラー行列再構成についてまとめた。

第3章では、「ミュラー行列計測を用いた強誘電体の光学特性評価法」を提案した。はじめに、測定装置として2重回転位相子型偏光系の測定およびキャリブレーション手法を説明し、作製した装置の構成および精度検定の結果を示した。そして、検証実験として、代表的な強誘電体セラミックスであるチタン酸ジルコン酸ランタン鉛(PLZT)の測定結果を示した。

第4章では、「ミュラー行列偏光顕微鏡を用いた強誘電体の分域構造の観察法」について提案した。これは、第3章での結果を展開したものと言える。すなわち、ミュラー行列を用いた強誘電体の評価が精度よく行えるという実験結果を受け、光学顕微鏡にミュラー行列偏光計を組み込んで強誘電体の分域構造の観察を可能にした結果について述べる。

第5章では、「幾何学的位相の非線形挙動を利用した偏光計測の高感度化」について検討した結果を示す。第4章での結果から、微小領域での分域構造の観察において偏光計測のさらなる高感度化の必要性を痛感した。そこで、偏光の幾何学的位相と弱測定概念に着目し、偏光計測の測定感度の向上について、さらにはその波長依存性も含めて検討した結果を述べる。

第6章では、論文全体の総括を行った。

## 参考文献

- [1] P. Drude, "Ueber die Gesetze der Reflexion und Brechung des Lichtes an der Grenze absorbirender Krystalle", *Ann. Phys.*, **32**, (1887), 584.
- [2] D. E. Aspnes, "Expanding horizons: new developments in ellipsometry and polarimetry", *Thin Solid Films*, **455-456**, (2004), 3-13.
- [3] H. Arwin, U. Beck and M. Schubert, "Preface: phys. Stat. sol. (c) 5/5", *Phys. Stat. Sol. (c)*, **5**, (2008), 1000-1002.
- [4] D. E. Aspnes and A. A. Studna, "High precision scanning ellipsometer", *App. Opt.*, **14**, (1975), 220-228.
- [5] Kenji Uchino, "Ferroelectric Devices", Marcel Dekker, (2000).
- [6] Jacques et Pierre Curie, "Développement par pression de l'électricité polaire dans des cristaux hémihédriques à faces inclinées", *Compt. rend.*, **91**, (1880), 383-387.
- [7] J. Valasek, "Piezoelectric and allied phenomena in Rochelle salt", *Phys. Rev.*, **19**, (2009), 537.
- [8] G. H. Haertling and C. E. Land, "Hot-pressed (Pb,La)(Zr,Ti)O<sub>3</sub> ferroelectric ceramics for electro-optic applications", *J. Am. Ceram. Soc.*, **54**, (1971), 1-11.
- [9] P. E. Shames, P. C. Sun and Y. Fainman, "Modeling of scattering and depolarizing electro-optic devices. i. characterization of lanthanum-modified lead zirconate titanate", *Appl. Opt.*, **37**, (1998), 3717-3725.
- [10] S. Nomura, H. Arima and F. Kojima, "Quadratic Electro-Optic Effect in the System Pb(Zn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **12**, (1973), 531-535.
- [11] L. M. Levinson, "Electric Ceramics", Marcel Dekker, (1988).
- [12] M. E. Lines and A. M. Glass, "Principles and Applications of Ferroelectrics Related Materials", Clarendon Press, (1977).
- [13] T. Ohashi, H. Hosaka and T. Morita, "Refractive index memory effect of ferroelectric materials induced by electrical imprint field", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47**, (2008), 3985-3987.
- [14] K. Uchino, "Electro-optic ceramics and their display applications", *Ceramics International*, **21**, (1995), 309-315.
- [15] T. Koike, K. Yamamoto and K. Naemura, "Fundamental study of a high-speed varifocal lens with PLZT: towards the light field display using a high-speed field-sequential method", *ITE Technical Report*, **33**, (2009), 41-44.
- [16] C. B. Sawyer and C. H. Tower, "Rochelle Salt as a Dielectric", *Phys. Rev.*, **35**, (1930), 269.
- [17] 新妻 弘明, 大和田 淳一, 佐藤 利三郎, 「電気光学効果を用いた強誘電体セラミックスの分極分布測定」 *電気学会論文誌 A*, **98**, (1977), 151-158.
- [18] K. Carl and K. Geisen, "Dielectric and optical properties of a quasi-ferroelectric PLZT ceramic" *Proc. IEEE*, **61**, (1973), 397-404.
- [19] Ki-Young Oh, Kenji Uchino and L. E. Cross, "Optical study of Domains in Antiferroelectric Ceramics" *Adv. Perform. Mater.*, **4**, (1997), 135-145.

- [20] Q. Liu, N. Fleck, J. Huber and D. Chu, " Birefringence measurements of creep near an electrode tip in transparent PLZT", *J. Eur. Ceram. Soc.*, **29**, (2009), 2289-2296.
- [21] D. Goldstein, " Polarized light", Marcel Dekker, (2003).
- [22] S. Krishnan, S. Hampton, J. Rix, B. Taylor and R. M. A. Azzam, "Spectral polarization measurements by use of the grating division-of-amplitude photopolarimeter", *Appl. Opt.*, **42**, (2003), 1216-1227.
- [23] Shuich Kawabata, "High-speed Transmission type Four Detectors Polarimeter and its Applications", *Frontiers in Optics/Laser Science XXIX*, JW3A.14, OSA (2013)
- [24] E. Collett, "Determination of the ellipsometric characteristics of optical surfaces using nanosecond laser pulses", *Surf. Sci.*, **96**, (1980), 156-167.
- [25] K. Oka and T. Kato, "Spectroscopic polarimetry with a channeled spectrum", *Opt. Lett.*, **24**, (1999), 1475-1477.
- [26] N. Hagen, K. Oka and E. L. Dereniak, "Snapshot Mueller matrix spectropolarimeter", *Opt. Lett.*, **32**, (2007), 2100-2102.
- [27] K. Oka and N. Saito, "Snapshot complete imaging polarimeter using Savart plates", *Proc. SPIE*, **6295**, (2006), 629508.
- [28] R.M.A.Azzam, " Photopolarimetric measurement of the Mueller matrix by Fourier analysis of a single detected signal ", *Opt. Lett.*, **2**, (1978), 148-150.
- [29] 田中正之介, 中島吉則, 雨宮秀行, 大谷幸利, "液晶位相変調器を用いたストークス偏光計", *光学*, **41**, (2012), 149-157.
- [30] R. C. Thompson, J. R. Bottiger, and E. S. Fry, " Measurement of polarized light interactions via the Mueller matrix ", *Appl. Opt.*, **19**, (1980), 1323-1332.
- [31] G. E. Jellison and F. A. Modine, " Two-modulator generalized ellipsometry: theory ", *Appl. Opt.*, **36**, (1997), 8190-8198.
- [32] O. Arteaga, J. Freudenthal, B. Wang and B. Kahr, " Mueller matrix polarimetry with four photoelastic modulators: theory and calibration ", *Appl. Opt.*, **51**, (2012), 6805-6817.
- [33] N. Nassau, H. J. Levinstein and G. M. Loiacono, " THE DOMAIN STRUCTURE AND ETCHING OF FERROELECTRIC LITHIUM NIOBATE", *Appl.Phys. Lett.*, **6**, (1965), 228.
- [34] H. Blank and S. Amelinckx, " Direct observation of ferroelectric domains in barrium titanate by means of the electron microscope ", *Appl. Phys. Lett.*, **2**, (1963), 140-142.
- [35] Y. Cho, A. Kirihara, and T. Saeki, "Scanning nonlinear dielectric microscope", *Rev. Sci. Instrum.*, **67**, (1996), 2297-2303.
- [36] K. Takata, K. Kushida, K. Torii and H. Miki, " Strain Imaging of Lead-ZirconateTitanate Thin Film by Tunneling Acoustic Microscopy ", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**, (2004), 1281.
- [37] W. J. Merz, " Domain Properties in BaTiO<sub>3</sub>", *Phys. Rev.*, **88**, (1952), 421.

## 2 章 物質の分極と偏光の相互作用

強誘電体内での光の伝搬を取り扱うには、強誘電体の持つ分極とそれによってもたらされる透過光の偏光状態の変化を考える必要がある。そこで本章では、まず、2.1 節で強誘電体の構造および光学的な性質について述べる。次に、2.2 節で偏光とその数式的取り扱い方について述べる。そして 2.3 節で、強誘電体の偏光解析による評価法について述べる。

### 2.1 強誘電体

強誘電体は誘電体の一種であり、高誘電率誘電体、焦電センサ、圧電デバイス、電気光学デバイス、PTC (positive temperature coefficient) サーミスタ素子のような様々なデバイスに応用されている[1]。この理由は、強誘電体材料が、表 2.1 にまとめた材料の各種効果のうち磁気現象を除いた全ての効果を示すスマート材料であるためである。強誘電体がこのような特性を示すのは、強誘電体が自発分極という電気的な偏りを持つことに起因する。誘電体は、構成原子が正か負にある程度イオン化しており、誘電体に電場を印加すると、静電的相互作用により、陽イオンは陰極に、陰イオンは陽極に引かれて電子雲を変形し、電気双極子を生じる。この現象を誘電体の電気分極という。非中心対称的な結晶構造を持つ誘電体の一部では陽イオンと陰イオンの重心が一致せず、電場を印加せずとも電気双極子を持つ。これを自発分極といい、自発分極を持つ誘電体を焦電体という。焦電体の中でも特に、電場によって結晶の破壊を起こさずに自発分極の向きを変えられる材料が強誘電体である。強誘電体と焦電体を分ける定義には曖昧さが伴い、実際には焦電体に電場を印加して実験的に分極が反転するかを確認することが必要となる。

Table 2.1 Diverse effects of materials.

output input	electricity	magnetism	strain	heat	light
electric field	electric permittivity	electromagnetic effect	inverse piezoelectric effect	electro-caloric effect	electro-optic effect
magnetic field	magneto-electric effect	magnetic permeability	magnetostriction effect	magneto-caloric effect	magneto-optic effect
stress	piezoelectric effect	piezomagnetic effect	elastic constant		photo-elastic effect
heating	pyroelectric effect		thermal expansion	specific heat	
light	photovoltaic effect		photo-strictive effect		refractive index

強誘電体と焦電体は分極反転の可否を除けば同族物質であるため、どちらも圧電効果や焦電効果などを示し、同様のデバイス応用が可能である。しかし、自発分極に起因するこれらの効果は、

応力や電場を印加する方向と自発分極の向きが一致していなければ十分な強さが得られない。そのため、焦電体を用いたデバイスを製造する場合には任意の向き of 自発分極を持つ十分な大きさの単結晶が必要となる。一方、強誘電体は電場の印加によって後から分極の向きを制御できるため、強誘電性の結晶の粉体を所望の形に成形して焼結させたのちに電場を印加することで、容易に必要な自発分極を持つ強誘電性のセラミックスを得ることができる。そのため、本研究では強誘電性セラミックスを対象とした適切な評価手法を検討する。

### 2.1.1 強誘電体の分極

強誘電性を示す結晶構造には、三方晶系イルメナイト類似構造や KDP 型結晶などいくつかの種類があることが知られている。特にペロブスカイト型と呼ばれる結晶構造は自発分極を持ちやすく、チタン酸バリウムをはじめとするペロブスカイト型化合物の開発および応用は第2次世界大戦以降から今日まで重点的に研究されてきた[2, 3]。そこで、本小節ではペロブスカイト型の中でももっとも単純な立方晶ペロブスカイト構造を例に挙げて強誘電体の自発分極について述べる。

図 2.1 に、立方晶ペロブスカイト構造を示す。理想的なペロブスカイト型の結晶構造は体心位置にイオン A，単位格子の各頂点にイオン B，そして面心位置に酸素イオンを配した形となっている。図 2.1(a)に示すように、高温の常誘電相(無極性相)では立方晶のため中心対称となり自発分極を持たない。しかし、キュリー点と呼ばれる相転移温度  $T_C$  以下では、結晶構造が図 2.1(b)のような少し縦長の正方晶もしくは菱面体晶の強誘電相となり、単位格子の中心を占めるイオン A が体心位置からシフトするため自発分極を持つ。なお、キュリー点は粒径や不純物の多寡などで変化するが、チタン酸バリウムで  $120^\circ\text{C}$ ，PZT で  $360^\circ\text{C}$  である。

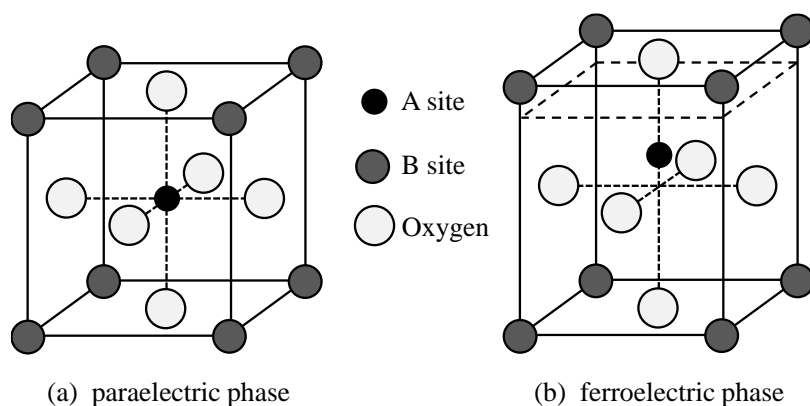


Fig. 2.1 Structure of perovskite-type ferroelectric crystal.

弾性エネルギー的には無極性である常誘電相が安定であるにもかかわらず、キュリー点以下で強誘電相を示す理由を述べる。簡単のために、体心位置にあるイオン A に着目し、イオン A が単位格子に対して変位することで双極子モーメントが発生するものとする。もし、イオン A が面心位置からシフトした状態が結晶のエネルギーを減少させるのであれば、イオンはエネルギー状態を低く



しようとしてその状態に遷移し、結晶は安定化する。イオンシフトの原動力となるのは、周囲の分極によって発生する内部電場による局所場である。外部からの電場は考えず、物質中のイオン A から  $\vec{r}_i$  だけ離れているある点  $i$  の双極子モーメントを  $\vec{p}_i$  とすると、イオン A の位置での局所場  $\vec{E}_{loc}$  は、

$$\vec{E}_{loc} = \sum_i \frac{3(\vec{p}_i \vec{r}_i) \vec{r}_i - r_i^2 \vec{p}_i}{4\pi\epsilon_0 r_i^5}, \quad (2.1)$$

で与えられる。ここで、 $\epsilon_0$  は真空中の誘電率である。式(2.1)は、単位体積当たりの巨視的な双極子モーメントである分極  $\vec{P}$  を用いて、

$$\vec{E}_{loc} = \frac{\gamma}{3\epsilon_0} \vec{P}, \quad (2.2)$$

と簡単に書くことができる。このときの  $\gamma$  はローレンツ因子と呼ばれる。イオン A のイオン分極率を  $\alpha$  とすると、イオン A の単位格子当りの双極子モーメント  $\vec{\mu}$  は、

$$\vec{\mu} = \frac{\alpha\gamma}{3\epsilon_0} \vec{P}, \quad (2.3)$$

となる。したがって、双極子モーメントのエネルギーである双極子相互作用  $w_{dip}$  は、

$$w_{dip} = -|\vec{\mu}| |\vec{E}_{loc}| = -\frac{\alpha\gamma^2}{9\epsilon_0^2} P^2, \quad (2.4)$$

であり、 $N$  を単位体積当たりのイオンの数と定義すると、

$$W_{dip} = Nw_{dip} = -\frac{N\alpha\gamma^2}{9\epsilon_0^2} P^2, \quad (2.5)$$

となる。次に、弾性エネルギーについて考える。イオン A が無極性平衡位置から変位したときには弾性エネルギーも増加する。イオンの変位が  $u$ 、力の係数を  $k, k'$  とすると、単位体積当たりの弾性エネルギーの増加は、

$$W_{elas} = N \left( \frac{k}{2} u^2 + \frac{k'}{2} u^4 \right), \quad (2.6)$$

となる．ここで， $k'(>0)$ は高次の力の係数である．イオン A の電荷を  $q$  とすると，

$$\vec{P} = Nqu, \quad (2.7)$$

であるため，式(2.5)および(2.6)より，イオン A の全エネルギーは，

$$\begin{aligned} W_{tot} &= W_{dip} + W_{elas} \\ &= \left( \frac{k}{2Nq^2} - \frac{N\alpha\gamma^2}{9\epsilon_0^2} \right) P^2 + \frac{k'}{4N^3q^4} P^4, \end{aligned} \quad (2.8)$$

と求められる．エネルギーの極小条件を考えれば，式(2.8)の右辺第 1 項において，弾性エネルギーの調和係数  $k/2Nq^2$  が双極子相互作用の係数  $N\alpha\gamma^2/9\epsilon_0^2$  と等しいか，もしくは大きい場合には  $P=0$  で極小となりイオン A は無極性平衡位置に留まる．弾性エネルギーの調和係数が小さい場合には，平衡位置からシフトした，

$$P^2 = \frac{(2N\alpha\gamma^2/9\epsilon_0^2) - (k/Nq^2)}{k'/N^3q^4}, \quad (2.9)$$

を満足するところが安定となる．ここで，式(2.9)より，高次の力の係数である  $k'$  が双極子モーメントの大きさを決定する重要な要素となっていることは，強誘電体の計測をするうえで注意事項となる．ローレンツ因子は，等方性の立方晶系が  $\gamma=1$  である[4]のに対し，チタン酸バリウム ( $\gamma=10$ ) [5] のようなペロブスカイト型化合物の方が大きくなる．そのためペロブスカイト型の結晶構造は他の結晶構造よりも自発分極を持ちやすい．また，イオン分極率  $\alpha$  は温度に対して敏感であることが知られており[1]，仮に高温時に  $(k/2Nq^2) - (N\alpha\gamma^2/9\epsilon_0^2) > 0$  となって常誘電体であっても，温度低下とともに負になって強誘電体に相転移する可能性がある．これが弾性エネルギー的には無極性である常誘電相が安定であるのかにかかわらず，キュリー点以下で強誘電相を示す理由である．

## 2.1.2 グレイン構造と分域構造

強誘電性を持つ結晶粒は，常誘電相から強誘電相に相転移するとき，結晶粒内のエネルギーが最も低くなるように自発分極の向きが異なる多くの分域(ドメイン)に分かれる．図 2.2 に，結晶粒内の分域の分布である分域構造について示す．図 2.2(a)に示すように，相転移直後は巨視的にみると各分域の自発分極が互いに打ち消しあって，強誘電性に付随する圧電効果などの各効果は示さ

ない状態となっている。このような状態を未分極状態という。未分極状態の強誘電体に高電場を印加すると、各分域の境界である分域壁は分域内に比べて局所場が小さいため、分域壁から自発分極の反転が次々と連鎖的に発生し、図 2.2(b)に示すように見かけ上は音速程度の速度で分域壁が移動しているように見える。分域壁の移動により印加電場と異なる向きの分域は次第に消滅していき、図 2.2(c)のような単分域に近づいていく。理想的には最終的に純粋な単分域となるが、実際には結晶欠陥の存在や分極の反転に伴う内部歪みの影響で完全な単分域にはならない。自発分極の反転が生じる電場を抗電場  $E_c$ 、このように分極を反転させて分域をそろえる処理を分極処理という[4]。式(2.9)より、単位格子の体心位置に対して対称となる 2 箇所がイオン A の安定点となるため、分極処理後に印加している電場をゼロにしても、図 2.2(d)のように内部応力的に不安定なものを除けば分極は電場方向に反転したまま残り、これを残留分極という。ここから逆方向に電場を印加すると、同様に電場強度が抗電場  $E_c$  よりも大きくなったときに分極が反転する。

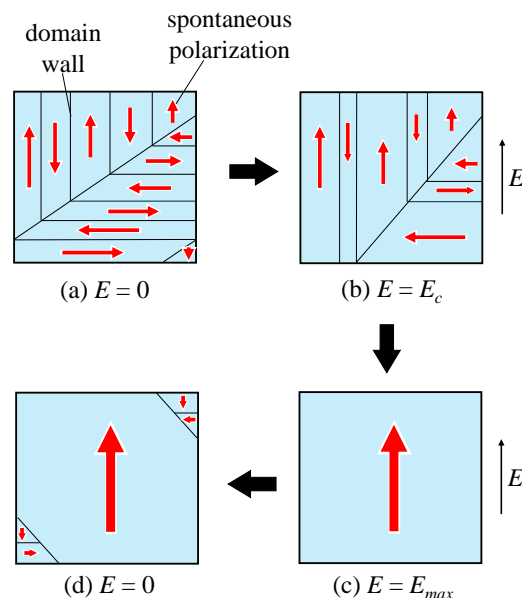


Fig. 2.2 Polarization treatment of the domain structure.

図 2.3 に、分極処理を施した時の印加電場に対する印加電場方向の分極の大きさを示す。このグラフは強誘電体の履歴曲線(ヒステリシスカーブ)と呼ばれ、ソーヤ・タワー回路[5]を用いて簡単に測定することができるため、強誘電体の分域構造の評価法として一般的に用いられている。

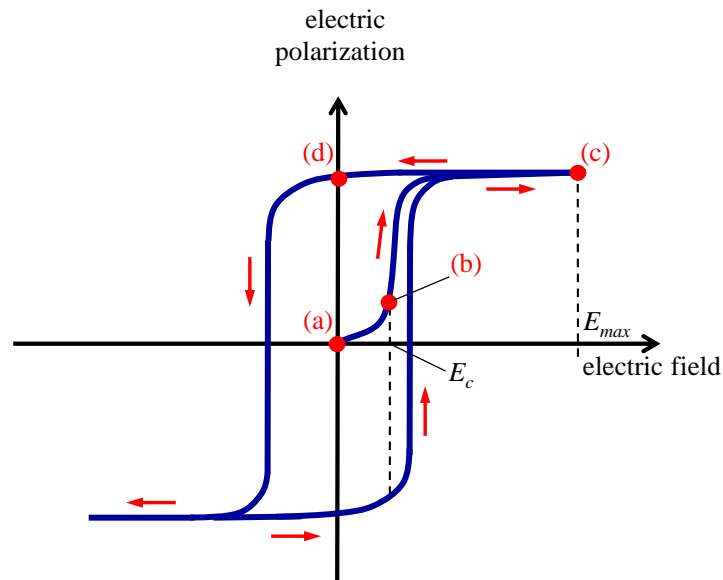


Fig. 2.3 A hysteresis curve of a domain.

強誘電性セラミックスは多結晶材料であるため、微結晶の集合体であるグレイン構造と各結晶粒内の分域構造の2つの構造が重なっている。図 2.4 に、強誘電性セラミックスの分極処理の様子を示す。実際には個々の結晶粒の内部は複数の分域に分かれており、分極処理時には各結晶粒の分域の大きさが変化しているが、分域の変化は微視的な領域での現象で原子間力顕微鏡などを用いなければ観察することが難しい[6]。そのため、個々の結晶粒などのある一定範囲の分極の平均をその範囲の分極と考え、電場の印加によって分極の向きが回転していると解釈するのが一般的であり、図 2.4 の表記もそれに従っている。強誘電性セラミックスに分極処理を施した場合には、結晶粒ごとにサイズや結晶軸の方位が異なるために個々の結晶粒で分極反転のタイミングが異なる。さらに、分域壁の移動が結晶粒界によって制限されるために、強誘電性セラミックスは抗電場  $E_c$  がある程度の幅を持つように見える。そのため、印加電場を大きくしていくと、分域の比率が徐々に変化して分極の向きは次第に電場方向に回転する。しかし、結晶粒界では分域壁の移動が阻害されやすく、複数の結晶粒にわたって分極が一致することは難しいため、電場を取り除いた後もグレイン構造に近い大きさで自発分極の向きがある程度ばらつく。特に、結晶粒径のばらつきや不純物の混入は分域壁の移動を阻害し、これは分域のピン留め効果として知られている。図 2.5 に、このときの強誘電性セラミックスの履歴曲線を示す。印加電場に対する分極の変化が結晶粒ごとに異なるため、図 2.3 に示した履歴曲線に比べて変化が緩やかに起こる「なで肩」の履歴曲線となる。また、結晶粒径やピン留め効果の大きさによって履歴曲線の形は敏感に変わるため、自発分極に起因する圧電効果などの各効果も大きく変化する。そのため、強誘電性セラミックスの示すそれぞれの効果は単結晶材料に比べて複雑な様相を呈する。

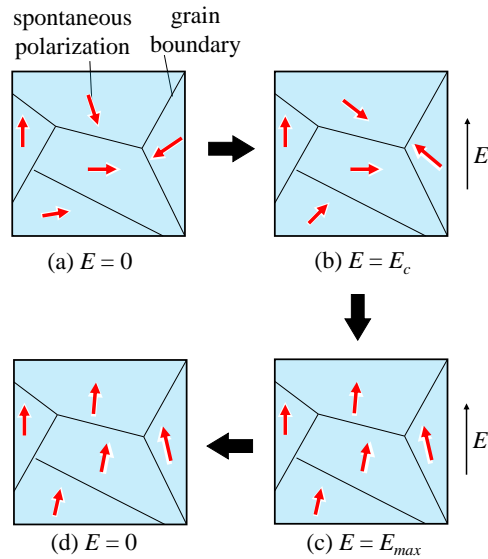


Fig. 2.4 Polarization treatment of the ferroelectric ceramics

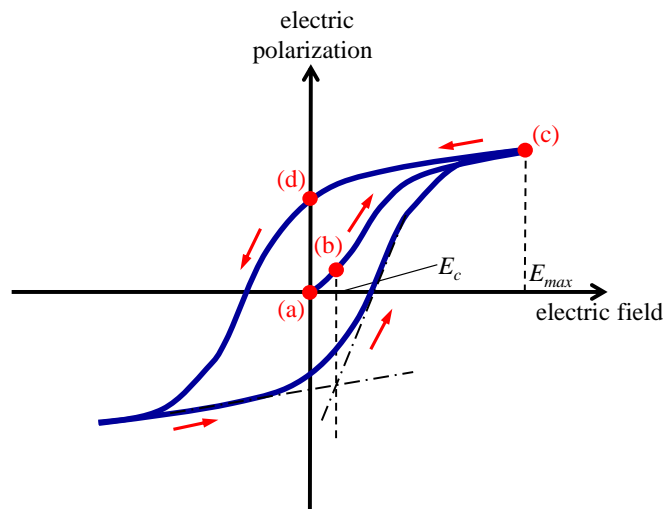


Fig. 2.5 A hysteresis curve of the ferroelectric ceramics.

### 2.1.3 電気光学効果

強誘電体に電場を印加すると屈折率が変化する現象を電気光学効果という。まずは誘電体中を光が伝搬する現象について考える。光は電場の振動であるので、誘電体に外部から光が入射すると、その光の電場によって誘電体に電気分極が生じる[7]。図 2.6 に、強誘電体の電気分極を示す。電気分極には大きく分けて 3 種類の寄与がある。電子雲の変形による電子分極、イオンの変位によるイオン分極および分域の向きによる配向分極である。各分極はそれぞれ追従可能な周波数の上限が異なり、電子分極が THz から PHz と一番高く、イオン分極は GHz から THz、配向分極は MHz から GHz まで追従できる。光の周波数は 450~790 THz であるため、電子分極のみが光の電

場の振動に追従できる．そのため誘電体に光が入射すると，各イオンの電子雲が振動し，新たな電磁波が発生する．この電磁波の総和が誘電体内を伝搬する光となる．

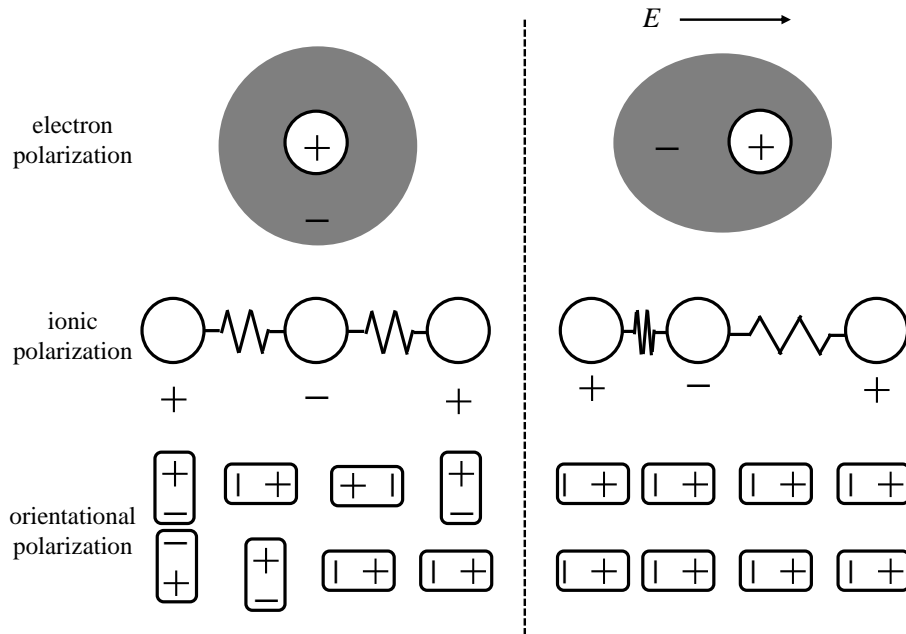


Fig. 2.6 Classification of electric polarizations according to their beginning.

電子はイオンから束縛を受けており，束縛された電子の電場に対する応答は，電子の質量を  $m$ ，電荷を  $q$ ，電子の変位を  $\vec{r}$ ，電子の固有振動数を  $\omega_0$ ，加わる電場を  $\vec{E}$  とするとローレンツモデルを用いて，

$$m \frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} = -m\omega_0^2 \vec{r} - m\gamma \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} + q\vec{E}, \quad (2.10)$$

と書ける[8]. 式(2.10)の右辺第1項の  $m\omega_0^2$  はバネ定数，第2項は速度に比例する摩擦力であり，第3項が電荷に作用するクーロン力である．このとき振動電場  $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-i\omega t}$  を考えると， $\vec{r}$  も振動数  $\omega$  で振動するので  $\vec{r} = \vec{r}_0 e^{-i\omega t}$  とおける．式(2.10)に代入して解くと，

$$\vec{r} = \frac{q/m}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} \vec{E}, \quad (2.11)$$

となる．電子1個の電子分極の大きさは  $\vec{p} = q\vec{r}$  であるので，誘電体全体の分極  $\vec{P}$  は原子数  $N$  および体積  $V$  を用いて，

$$\vec{P} = \frac{N}{V} \vec{p} = \frac{Nq^2}{mV} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} \vec{E}, \quad (2.12)$$

と書ける．ここで誘電体の比誘電率  $\varepsilon$  は、

$$\varepsilon = 1 + \frac{\vec{P}}{\varepsilon_0 \vec{E}} = 1 + \left( \frac{Nq^2}{\varepsilon_0 mV} \right) \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2}, \quad (2.13)$$

である．よって、誘電体の屈折率は電場の振動方向の電子密度もしくはイオン密度に比例する．強誘電体のように自発分極を持つ結晶では、結晶軸の方向によってイオン密度が異なるため、結晶軸によって屈折率が異なる．結晶軸の方向によって性質の異なることを異方性といい、強誘電体は異方性の結晶である．ただし、未分極状態の強誘電性セラミックスでは巨視的には自発分極が打ち消されているため、性質が結晶軸の方向に依存しない等方性になっていると考えられる．

電気光学効果には屈折率と電場の強さが比例するポッケルス効果と、電場の二乗に比例するカー効果がある．誘電体の屈折率はイオン密度に比例するため、これらの効果は印加電場による単位格子の変形つまり逆圧電効果について考えると直感的に理解できる．図 2.7(a)と(b)に単位格子の一次元的な剛体イオンバネモデルを示す．イオン同士を繋いでいるバネは、静電的なクーロンエネルギーと量子論的な反発エネルギーなどに由来する結合力を等価的に表現したものである．イオン同士をつなぐバネは、イオン間距離が短いほどクーロンエネルギーおよび反発エネルギーは高くなるため硬いバネとして示される．図 2.7(a)は、単位格子が非中心対称である場合を、(b)は中心対称である場合を示す．図 2.7(a)では非中心対称的な構造のためイオン間距離が異なり、左右のバネで硬さが異なる．図 2.7(a)の単位格子に電場  $E$  を印加すると、陽イオンは電場方向に、陰イオンは逆方向に静電的な引力が働くので、相対的にイオン間距離は変化する．図 2.7(a)では柔らかいバネの方が大きく伸縮するので、電場方向によって単位格子が伸び縮みする．これにより強誘電体は電場に比例した歪みを生じ、これを圧電歪みという．圧電歪みによってイオン密度が変化するため、印加電場に比例して屈折率が変化する一次の電気光学効果であるポッケルス効果を生じる．一方、図 2.7(b)ではバネが伸びと縮みを交互に生じ、その大きさが同じであるために、結晶全体でみれば歪みは生じないことになる．しかし、実際の強誘電体では、たとえ高温の常誘電相であってもイオン間は理想的なバネで結合されてはおらず、非調和性を含む．理想的なバネでは力  $F$ 、バネ定数  $k$ 、変位量  $\delta$  としたとき、

$$F = k \cdot \delta, \quad (2.14)$$

の関係が成立するのに対し非調和性のバネでは、バネ定数を  $k_1$  および  $k_2$  とすると、

$$F = k_1 \cdot \delta - k_2 \cdot \delta^2, \quad (2.15)$$

となる。つまり、このバネは若干伸びやすく、若干縮みにくい性質を持つ。このため強誘電体は電場の向きによらず、電場の二乗に比例した歪みである電歪を示す。電歪により、強誘電体は電場の二乗に比例する二次の電気光学効果であるカー効果を示す。したがって、強誘電体ではポッケルス効果およびカー効果が複合された形で現れる。しかし、これらの現象は、材料が単分域単結晶であり、その状態が印加した電場によって変化しないという仮定のもとに成り立つ。そのため、実際は圧電歪みおよび電歪だけでなく、分域構造の変化に伴う単位格子の歪みおよび逆圧電効果自体の変化を考慮しなければならない。さらに、強誘電性セラミックスではこれらの現象が結晶粒ごとにばらばらに生じるためにさらに複雑になり、分域・グレイン構造と電気光学効果の関係の解明には光学特性の変化をより詳細に調べる必要がある。

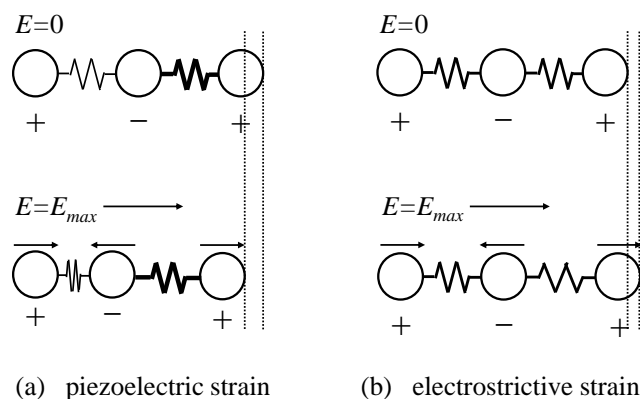


Fig. 2.7 Schematic illustration of piezoelectric strain and electrostrictive strain.

## 2.2 偏光の定量的表現

偏光とは光の振動方向に関する概念である。強誘電体のような異方性の媒質中を光が伝搬するとき、光はその偏光の状態によって異なる現象を示す。そのため異方性結晶中を伝搬する光を考えると、その光の偏光状態を無視することはできない。ここでは、偏光とその表現方法について述べる。

### 2.2.1 光の偏光

光は電場と磁界の振動であり、その伝搬方向と直交する方向に振動している。よって光は振動方向について自由度を持ち、その振動方向の偏りもしくは偏りを持った光のことを偏光という。偏光はその振動の描く軌跡によって3種類に分類される。図2.8に、光の進行方向に垂直な平面



内(偏光面)における光の電場ベクトルの軌跡を示す. 図 2.8(a)のように同一直線上を振動する偏光を直線偏光, (b)のように楕円を描いて振動する偏光を楕円偏光, (c)のように円を描いて振動する偏光を円偏光という. また, 円偏光はその回転方向によって右円偏光および左円偏光という場合もある. 偏光の状態は楕円偏光の傾き, 楕円率および回転方向によって定められる.

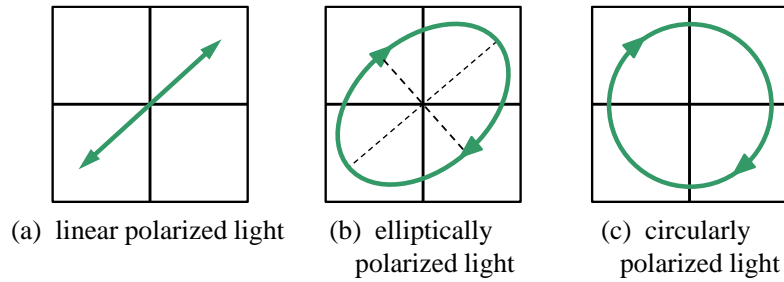


Fig. 2.8 Polarization state of light.

これら偏光状態は, 電場がベクトル場であることから, 複数の偏光の重ね合わせとして考えることができる. 特に, 偏光状態を直交する2つの直線偏光もしくは左右円偏光に分解して表現すると, 偏光の伝搬について考える場合に有用であることが多い[9]. 直交する2つの直線偏光が基準となる系に対して垂直および水平であるとき, 垂直方向の直線偏光を p 偏光, 水平方向の直線偏光を s 偏光という. 図 2.9 に, 偏光をそれらの偏光成分に分解した様子を示す. 図 2.9(a)に示すとおり, 分解した2つの直線偏光の間に位相差がない場合, 偏光は直線偏光となる. 図 2.9(b)に示すとおり, 分解した2つの直線偏光の間に位相差 $\delta$ があるとき楕円偏光となり, 位相差が  $1/4$  波長つまり  $90^\circ$  となるとき楕円偏光の長軸と短軸の長さが等しくなり円偏光となる. また, 分解した2つの直線偏光の振幅差によって楕円偏光の傾きは定まる.

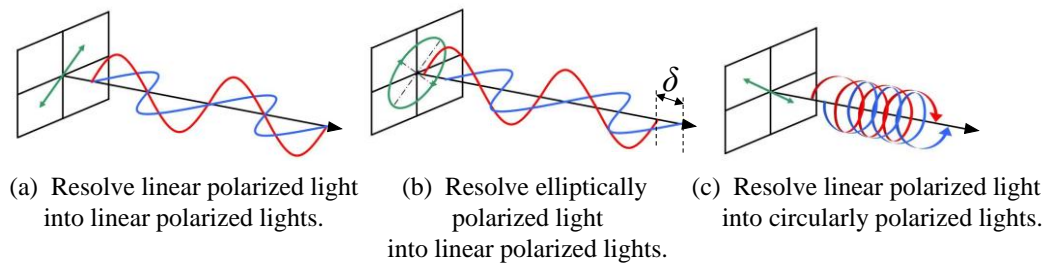


Fig. 2.9 Method of representing polarized light with components of polarized light.

一般的に, 太陽などの自然界でよく目にする光は全ての偏光状態が無秩序に重ね合わされ, 図 2.8 で示すような理想的な偏光状態にはなっておらず, その電場ベクトルの軌跡は完全に不規則である. このような光を自然光あるいは非偏光という. また, 非偏光と対比するときには偏光を完全偏光とよぶ. 完全偏光や非偏光は両極端な状態であり, 異方性媒質中を光が伝搬するときなど

に、電場ベクトルの軌跡にある程度の規則性が認められるようになる。このような光を部分偏光という。部分偏光を評価する指標に偏光度(DOP: degree of polarization)がある。非偏光と完全偏光には相関関係が無いため部分偏光は非偏光と完全偏光に分解でき、偏光度  $P$  は部分偏光の光強度を  $I_{tot}$ 、分解した完全偏光の光強度を  $I_{pol}$  としたとき、

$$P = \frac{I_{pol}}{I_{tot}}, \quad (2.16)$$

で表される。よって  $P=1$  で完全偏光であり、 $P=0$  では非偏光である。

### 2.2.2 ストークスベクトル

光は 450~790 THz で振動しているので、楕円偏光の傾き、楕円率および回転方向は直接測定することが出来ない。そこで、偏光状態を測定可能な項目で定量的に表現する方法が必要である。この条件を満たす偏光状態の表現方法がストークスベクトルである[9]。ストークスベクトル  $\mathbf{S}$  は 4 つの可観測なストークスパラメータ  $S_0$ ,  $S_1$ ,  $S_2$  および  $S_3$  からなり、

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{0x}^2 + E_{0y}^2 \\ E_{0x}^2 - E_{0y}^2 \\ 2E_{0x}E_{0y} \cos \delta \\ 2E_{0x}E_{0y} \sin \delta \end{bmatrix}, \quad (2.17)$$

のように表すことができる。ここで、 $E_{0x}$  および  $E_{0y}$  は p 偏光成分および s 偏光成分の最大振幅、 $\delta$  は p 偏光と s 偏光との位相差である。式(2.17)より、各ストークスパラメータの関係は、

$$S_0^2 = S_1^2 + S_2^2 + S_3^2, \quad (2.18)$$

で与えられる。振幅の二乗が光強度となるので、 $S_0$  が全光強度、 $S_1$  が p 偏光と s 偏光の光強度の差、 $S_2$  が +45° および -45° 方向の直線偏光の光強度の差、 $S_3$  が左右円偏光の光強度の差になる。この 4 つのパラメータの組で全ての偏光状態を表すことができる。

また、ストークスベクトルは完全偏光だけでなく、非偏光および部分偏光も表すことができる。非偏光は全ての偏光状態が等分に含まれているので、非偏光のストークスベクトル  $\mathbf{S}_{non}$  は、

$$\mathbf{S}_{\text{non}} = I_0 \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (2.19)$$

となる．偏光度  $P$  は部分偏光に完全偏光の含まれる割合と考えることができるので，ストークスベクトル  $\mathbf{S}$  は，

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} = (1-P)I_0 \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} + P \begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix}, \quad (2.20)$$

と書け，式(2.16)および式(2.18)は，

$$P = \frac{I_{\text{pol}}}{I_{\text{tot}}} = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0}, \quad (2.21)$$

$$S_0^2 \geq S_1^2 + S_2^2 + S_3^2, \quad (2.22)$$

と書き換えられる．なお，式(2.22)の等号成立は， $P=1$  すなわち完全偏光のときである．以上のことから，ストークスベクトルは非偏光を含む全ての偏光状態を定量的に表現できることがわかる．

## 2.3 強誘電体の偏光特性

強誘電体のような異方性媒質中を光が伝播するとき，光の振動方向と媒質の光学軸との相対的な位置関係から光にさまざまな変化が起こる．これは偏光特性としてまとめられ，偏光特性から媒質の多くの情報を読み取ることが可能である．

### 2.3.1 強誘電体の偏光特性

物質透過前後や反射時に光の偏光状態が変化することがある．偏光状態を変化させる性質を偏光特性という．偏光特性は，物質の光学的異方性に起因し，5つに分類される．図 2.7 に，結晶の各偏光特性を示す．

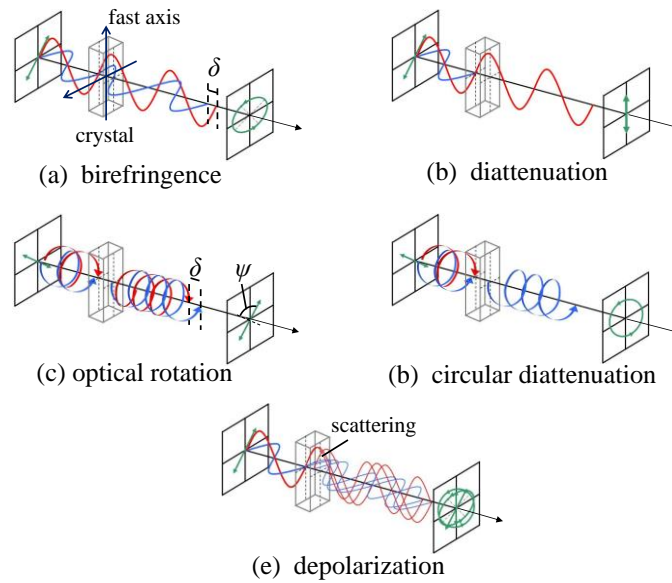


Fig. 2.10 Polarization properties of anisotropic crystal.

図 2.10(a)は、複屈折性と呼ばれ、直交する 2 つの直線偏光成分間に位相差を与える性質である。結晶が電場の振動方向によって異なる屈折率を持つとき複屈折性結晶となる。複屈折性結晶に光が入射すると、光は結晶の入射面に対して最も屈折率の高い軸方向である遅相軸と最も低い軸方向である進相軸に分解される。それぞれの振動方向に対して屈折率が異なることから光の速度に差が生じ、物質透過後の 2 つの直線偏光成分間には位相差が生じる。そのため、入射前後で偏光の楕円率が変化しており、複屈折性は進相軸もしくは遅相軸の傾きである方位角と与える位相差である複屈折位相差によって表される。

図 2.10(b)は、二色性と呼ばれ、直交する 2 つの直線偏光成分に振幅差を与える性質である。結晶が電場の振動方向によって異なる吸収率を持つとき二色性結晶となる。二色性結晶も複屈折性結晶と同様に、入射光を 2 つの直線偏光成分を吸収率の高い軸方向と低い軸方向に分解したとき、それぞれの振動成分の振幅の変化量に差を与える。これにより元の偏光と結晶のなす角や吸収率によって楕円偏光の傾き、楕円率および回転方向が変化する。

図 2.10(c)は、旋光性と呼ばれ、左右円偏光成分に位相差を与える性質である。結晶が電場の回転方向によって異なる屈折率を持つとき旋光性結晶となる。旋光性は、結晶構造がその鏡像と重ね合わせることでできない対掌性を持つ結晶に見られる。旋光性結晶に光が入射すると、光は右円偏光と左円偏光に分解され、それぞれの回転方向に対して屈折率が異なることから物質透過後の左右円偏光成分間には位相差が生じる。そのため、入射前後で偏光の楕円偏光の傾きが変化しており、旋光性は傾きの変化量である旋光角によって表される。

図 2.10(d)は、円二色性と呼ばれ、左右円偏光成分に振幅差を与える性質である。結晶が電場の回転方向によって異なる吸収率を持つとき円二色性結晶となり、旋光性と同様に対掌性を持つ結晶に見られる。円二色性結晶に光が入射すると、光は右円偏光と左円偏光に分解され、それぞれ

の回転方向に対して吸収率が異なることから物質透過後の左右円偏光成分に異なる振幅の変化量を与える。吸収率の差によって楕円偏光の傾き，楕円率および回転方向が変化する。

図 2.10(e)は，偏光解消と呼ばれ，入射光を複数の偏光状態が混在した状態にして偏光度を小さくする性質である。結晶が上記 4 つの偏光特性について空間的もしくは時間的に異なる分布を持つとき，出射光では複数の偏光状態が混ぜ合わされて偏光解消を示す。偏光解消は偏光が非偏光となる割合を示す偏光解消度によって表される。

強誘電体は，その単位格子が分極方向に歪んでいるため，結晶軸によって屈折率が異なり複屈折性を示す。また，一般的には対掌性を持たないため旋光性および円二色性は示さないと考えられる。また，セラミックス材料であれば複屈折性に空間的な分布を持ち，複数の偏光状態を作りだすため偏光解消が起こる。この偏光解消については 2.3.2 小節で詳しく述べる。

### 2.3.2 グレイン・分域構造による偏光解消

強誘電体は，その単位格子にのみ着目して考えれば分極方向の屈折率が小さくなる。そのため，強誘電体が単分域構造であるならば純粋な複屈折性結晶として扱える。図 2.11 に，単分域構造における強誘電体の複屈折性を示す。しかし，実際には強誘電体は単結晶材料であっても分域構造を持ち，強誘電性セラミックスであればさらにグレイン構造を持つ。そのため複屈折性に空間的なばらつきを持ち，その分域壁や結晶粒界において複数の偏光状態が混ざることによって偏光解消が起きていると考えられる。図 2.12 に，強誘電体の偏光解消の様子を示す。

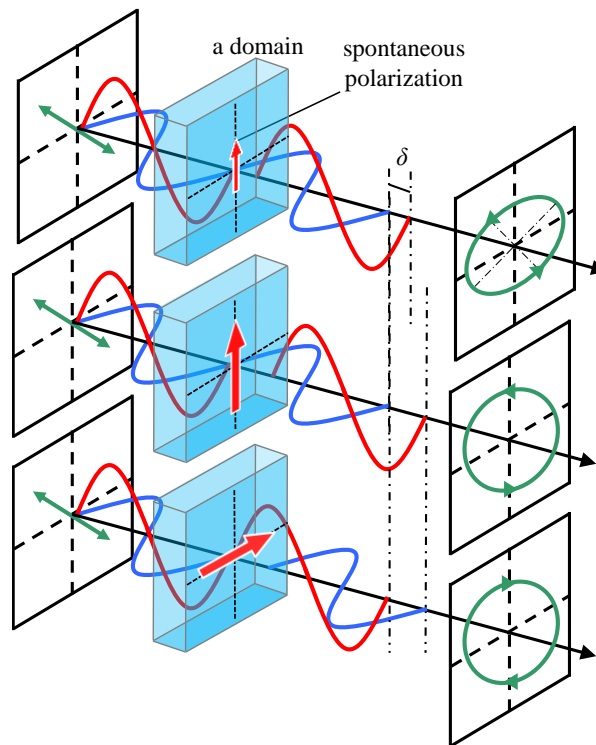


Fig. 2.11 Birefringence of a domain depending on its spontaneous polarization.

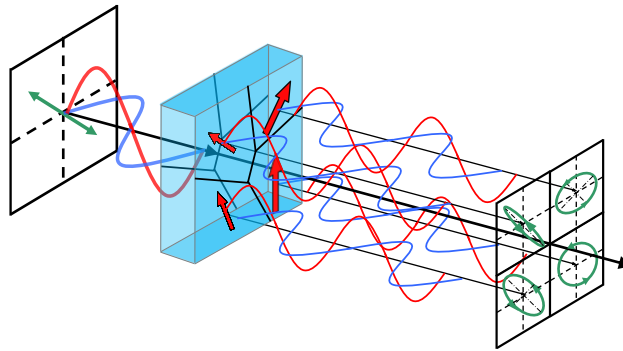


Fig. 2.12 Depolarization of the ferroelectric ceramics.

強誘電体で光学デバイスを作製するときには偏光解消の変化を考慮する必要がある。強誘電体に電場を印加すると電気光学効果によって電場方向の屈折率が変化つまり複屈折性が変化する。このとき、二次の電気光学効果であるカー効果は印加電場の向きによらない効果であるが、一次の電気光学効果であるポッケルス効果は印加電場が自発分極と同じ向きであれば屈折率が小さく(= 複屈折位相差が大きく)、逆向きであれば屈折率が大きく(= 複屈折位相差が小さく)なる。そのため、強誘電体に一様に電場を印加していても分域ごとに異なる複屈折性の変化を示す。また、印加電場が抗電場よりも大きくなればその分域構造自体が変化する。分域構造が変化すれば、強誘電体自体の複屈折性もポッケルス効果による複屈折性も大きく変化する。さらに、強誘電性セラミックスであればこれらの変化が結晶粒ごとにばらばらのタイミングで発生する。そのため、電場を印加すると強誘電体の複屈折性の空間分布が複雑に変化し、偏光解消もそれにもなって変化する。

### 2.3.3 ミュラー行列による偏光特性の定量化

複数の偏光特性を併せ持つ物質の各偏光特性を一度に測定することや、数学的に取り扱うといったことは難しい。偏光解消を含む全ての偏光特性を定量的に表現することを可能にするのがミュラー行列である。

ストークスペクトルを用いることで、非偏光を含めた全ての偏光状態を定量的に表現することができる。出射光および入射光の偏光状態をストークスペクトルを用いて表すと、偏光状態の変化はストークスペクトルの一次変換である考えることができる。入射光のストークスペクトルを  $\mathbf{S}_{in}$ 、出射光のストークスペクトルを  $\mathbf{S}_{out}$  とすると、 $\mathbf{S}_{in}$  と  $\mathbf{S}_{out}$  の関係は一次変換行列  $\mathbf{M}$  を用いて、

$$\mathbf{S}_{out} = \mathbf{M} \cdot \mathbf{S}_{in}, \quad (2.23)$$

すなわち、

$$\begin{bmatrix} S_{0out} \\ S_{1out} \\ S_{2out} \\ S_{3out} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} S_{0in} \\ S_{1in} \\ S_{2in} \\ S_{3in} \end{bmatrix}, \quad (2.24)$$

と表すことができる。この一次変換行列  $\mathbf{M}$  をミュラー行列という。非偏光を含む全偏光状態の変化を記述しているため、ミュラー行列には全ての偏光特性の情報が含まれていることになる。物質のミュラー行列が得られれば任意の偏光を入射したときの出射光の偏光状態を簡単な行列計算によって算出できる。また、ミュラー行列が一次変換行列であることから、複数のミュラー行列を1つにまとめることや、逆に1つのミュラー行列を複数のミュラー行列の積に分解することも可能であり、偏光を利用した光学系について考えるときに役立つ。このようなミュラー行列を用いた行列計算をミュラー法という。以上のことから、ミュラー行列は偏光特性が未知の強誘電体を扱ううえで有用である。

### 2.3.4 ミュラー行列再構成

ミュラー行列は全偏光状態の混在した状態を表しているため、強誘電体のミュラー行列を得たとしても、それだけでは強誘電体の光学応答はわかるが、強誘電体の物性として偏光特性を評価することは難しい。図 2.13 に、ミュラー行列の各要素が寄与する偏光特性を示す。図 2.13 より、ミュラー行列を各偏光特性を表す複数のミュラー行列に分解し、再構成することによって強誘電体の各偏光特性を取り分けて扱い、強誘電体の偏光特性を個別に評価できるようになる。ここでは偏光解消成分を含んだミュラー行列を再構成できる、Chipman らの提案手法を用いる[10]。

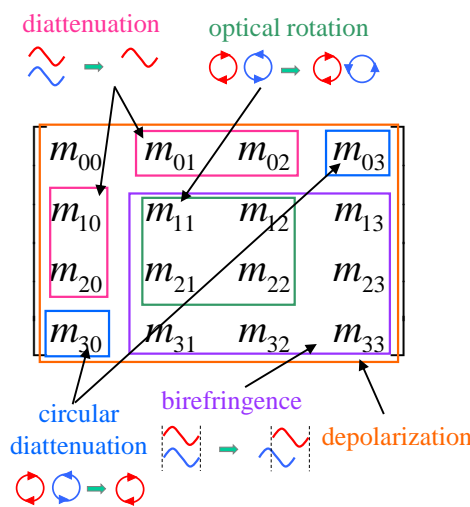


Fig. 2.13 Elements of Mueller matrix depending on polarization properties.

Chipman らの提案手法を用いると、ミュラー行列を偏光解消、吸収および位相差を表す行列に分解し、それぞれの行列から各偏光特性を表すパラメータを取得できる。ミュラー行列を  $\mathbf{M}$ 、偏光解消成分を  $\mathbf{M}_\Delta$ 、吸収成分を  $\mathbf{M}_D$ 、位相差成分を  $\mathbf{M}_R$  とすると、

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}_\Delta \mathbf{M}_R \mathbf{M}_D, \quad (2.25)$$

と再構成することができる。

はじめにミュラー行列  $\mathbf{M}$  から吸収成分を算出する。吸収成分  $\mathbf{M}_D$  は、

$$\mathbf{M}_D = \begin{pmatrix} 1 & \vec{D}^T \\ \vec{D} & \mathbf{m}_D \end{pmatrix}, \quad (2.26)$$

と書ける。ここで、 $\vec{D}$  はミュラー行列  $\mathbf{M}$  の第 1 行の要素を用いて、

$$\vec{D} = \frac{1}{m_{00}} \begin{pmatrix} m_{01} \\ m_{02} \\ m_{03} \end{pmatrix}, \quad (2.27)$$

と書け、行列  $\mathbf{M}_D$  の部分行列  $\mathbf{m}_D$  は、 $\vec{D}$  と 3 次の単位行列  $\mathbf{I}$  から、

$$\mathbf{m}_D = a\mathbf{I} + b(\vec{D} \cdot \vec{D}^T), \quad (2.28)$$

$$a = \sqrt{1 - |\vec{D}|^2}, \quad (2.29)$$

$$b = \frac{1 - \sqrt{1 - |\vec{D}|^2}}{|\vec{D}|^2}, \quad (2.30)$$

と算出できる。以上より行列  $\mathbf{M}_D$  が求まり、 $\mathbf{M}_D$  から吸収される光強度の割合を示すダイアテニュエーション  $D$  が得られる。

$$D = |\vec{D}| = \frac{1}{m_{00}} \sqrt{m_{01}^2 + m_{02}^2 + m_{03}^2}, \quad (2.31)$$

次に偏光解消成分  $\mathbf{M}_\Delta$  を算出する。 $\mathbf{M}_\Delta$  は、



$$\mathbf{M}_\Delta = \begin{pmatrix} 1 & \vec{0}^T \\ \vec{P}_\Delta & \mathbf{m}_\Delta \end{pmatrix}, \quad (2.32)$$

とおけて, このとき  $\vec{P}_\Delta$  は,

$$\vec{P}_\Delta = \frac{\vec{P} - \mathbf{m}\vec{D}}{1 - D^2}, \quad (2.33)$$

$$\vec{P} = \frac{1}{m_{00}} \begin{pmatrix} m_{10} \\ m_{20} \\ m_{30} \end{pmatrix}, \quad (2.34)$$

で与えられる. このとき式(2.33)の  $\mathbf{m}$  はミュラー行列  $\mathbf{M}$  の第1行と第1列を取り除いた部分行列である. 以上より  $\vec{P}_\Delta$  は求まる.

次に  $\mathbf{m}_\Delta$  を求める. 式(2.25)よりミュラー行列  $\mathbf{M}$  から吸収成分を取り除き,

$$\mathbf{M}' = \mathbf{M}\mathbf{M}_D^{-1} = \mathbf{M}_\Delta\mathbf{M}_R, \quad (2.35)$$

このとき位相差成分  $\mathbf{M}_R$  は,

$$\mathbf{M}_R = \begin{pmatrix} 1 & \vec{0}^T \\ \vec{0} & \mathbf{m}_R \end{pmatrix}, \quad (2.36)$$

とおけるので, 式(2.35)は,

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_\Delta\mathbf{M}_R &= \begin{bmatrix} 1 & \vec{0}^T \\ \vec{P}_\Delta & \mathbf{m}_\Delta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & \vec{0}^T \\ \vec{0} & \mathbf{m}_R \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} 1 & \vec{0}^T \\ \vec{P}_\Delta & \mathbf{m}_\Delta\mathbf{m}_R \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & \vec{0}^T \\ \vec{P}_\Delta & \mathbf{m}' \end{bmatrix} = \mathbf{M}', \end{aligned} \quad (2.37)$$

と書きかえられる. 式(2.33)より,

$$\mathbf{m}'(\mathbf{m}')^T = \mathbf{m}_\Delta\mathbf{m}_R(\mathbf{m}_\Delta\mathbf{m}_R)^T = \mathbf{m}_\Delta^2, \quad (2.38)$$

となる．位相差成分の部分行列  $\mathbf{m}_R$  が回転行列でありその行列式は正となるため， $\mathbf{m}'$  の行列式の符号と  $\mathbf{m}_\Delta$  の行列式の符号は一致する．通常，測定する偏光解消度は小さく， $\mathbf{m}_\Delta$  の固有値は1に近い値を取ることから， $\mathbf{m}_\Delta$  の固有値は全て同符号であると仮定できる．この仮定より，式(2.34)の固有値を  $\lambda_1$ ， $\lambda_2$  および  $\lambda_3$  とすると， $\mathbf{m}_\Delta$  の固有値は  $\sqrt{\lambda_1}$ ， $\sqrt{\lambda_2}$  および  $\sqrt{\lambda_3}$  となる． $\mathbf{m}'$  は既にわかっているのでケーリーハミルトンの定理より  $\mathbf{m}_\Delta$  は，

$$\mathbf{m}_\Delta = \pm [\mathbf{m}'(\mathbf{m}')^T + \kappa_2 \mathbf{I}]^{-1} [\kappa_1 \mathbf{m}'(\mathbf{m}')^T + \kappa_2 \mathbf{I}] \quad (2.39)$$

と書け，このとき，

$$\kappa_1 = \sqrt{\lambda_1} + \sqrt{\lambda_2} + \sqrt{\lambda_3}, \quad (2.40)$$

$$\kappa_2 = \sqrt{\lambda_1 \lambda_2} + \sqrt{\lambda_2 \lambda_3} + \sqrt{\lambda_3 \lambda_1}, \quad (2.41)$$

$$\kappa_3 = \sqrt{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3}, \quad (2.42)$$

である．以上より偏光解消成分  $\mathbf{M}_\Delta$  が求まり， $\mathbf{M}_\Delta$  より偏光の解消される割合を示す偏光解消度  $\Delta$  は，

$$\Delta = 1 - \frac{\text{tr}|\mathbf{M}_\Delta|}{3}, \quad (2.43)$$

と求めることができる．ここで， $\text{tr}$  は行列の対角成分の和を示すトレースである．

最後に位相差成分  $\mathbf{M}_R$  を求める．式(2.37)より，

$$\mathbf{m}_R = \mathbf{m}_\Delta^{-1} \mathbf{m}', \quad (2.44)$$

と書けるので， $\mathbf{m}_R$  は求まり  $\mathbf{M}_R$  が決まる． $\mathbf{M}_R$  から旋光角  $\psi$  および複屈折位相差  $\delta$  を算出できる．

$\mathbf{M}_R$  の a 行 b 列を  $M_R(a,b)$  と書くと，

$$\psi = \tan^{-1} \left\{ \frac{M_R(3,2) - M_R(2,3)}{M_R(2,2) + M_R(3,3)} \right\}, \quad (2.45)$$

$$\delta = \cos^{-1} \left[ \sqrt{\{M_R(2,2) + M_R(3,3)\}^2 + \{M_R(3,2) - M_R(2,3)\}^2} - 1 \right], \quad (2.46)$$

となる。旋光性を表すミュラー行列  $\mathbf{M}_{\text{ROT}}$  は旋光角  $\psi$  を用いて、

$$\mathbf{M}_{\text{ROT}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 2\psi & \sin 2\psi & 0 \\ 0 & -\sin 2\psi & \cos 2\psi & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad (2.47)$$

と表せるので、複屈折性を表すミュラー行列  $\mathbf{M}_{\text{LR}}$  は  $\mathbf{M}_{\text{R}}$  と  $\mathbf{M}_{\text{ROT}}$  を用いて、

$$\mathbf{M}_{\text{LR}} = \mathbf{M}_{\text{ROT}}^{-1} \mathbf{M}_{\text{R}} = \begin{pmatrix} 1 & \vec{0}^t \\ \vec{0} & \mathbf{m}_{\text{LR}} \end{pmatrix}, \quad (2.48)$$

と書ける。 $\mathbf{M}_{\text{LR}}$  から結晶の進相軸もしくは遅相軸の傾きである方位角  $\varphi$  が求まる。 $\mathbf{M}_{\text{LR}}$  の a 行 b 列を  $M_{\text{LR}}(a,b)$  と書くと複屈折位相差  $\delta$  より、

$$\varphi = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left\{ \frac{r_2}{r_1} \right\}, \quad (2.49)$$

$$r_1 = \frac{1}{2} \sin \{ \delta \times M_{\text{LR}}(3,4) \}, \quad (2.50)$$

$$r_2 = \frac{1}{2} \sin \{ -\delta \times M_{\text{LR}}(2,4) \}, \quad (2.51)$$

で算出できる。

以上の手順で計算することで、結晶のミュラー行列から各偏光特性を表すパラメータである複屈折性を表す複屈折位相差  $\delta$  および方位角  $\varphi$ 、旋光性を表す旋光角  $\psi$ 、二色性および円二色性を表すダイアテニュエーション  $D$ 、加えて偏光解消度を表す偏光解消度  $\Delta$  が得られる。

### 2.3.5 強誘電体の偏光解析による評価法

強誘電体は電気光学効果によって複屈折性が変化するために複屈折性結晶として扱われる。そのため、印加電場の一乗もしくは二乗に比例した位相差を生じる材料として光学デバイスに組み

込まれ、その評価も複屈折性を測定することによって行われてきた。しかし、強誘電体は、実際には複屈折性の空間的なばらつきが複雑に変化し、出射光では複数の偏光状態が混在する偏光解消を示す。この齟齬が強誘電体を用いた高性能な光学デバイスの作製を困難にしてきた。ミューラ一行列を用いて全偏光特性を加味した光学応答を明らかにすればこの齟齬をなくすることができる。また、再構成によって印加電場による各偏光特性の変化を個別に評価すれば、偏光解消を抑えながら複屈折性を制御するといった新たな駆動も可能となる。

さらに、物性の面から偏光特性を見れば、複屈折位相差は分極の大きさを、方位角は分極の向きをそれぞれ反映している。偏光解消の影響を取り除き、強誘電体の結晶構造と複屈折性の関係を詳細に明らかにしていけば、分極の分布の動的な変化などを光学的手法によって定量的に評価することができるようになる。また、偏光解消は微小な領域での結晶構造の乱れを反映している。そのため、偏光解消の変化を詳細に追っていくことで、観察することの難しい微細な結晶構造の変化を評価できる可能性がある。

## 参考文献

- [1] Kenji Uchino, " Ferroelectric Devices", Marcel Dekker, (2000)
- [2] 沢田 正三, "新強誘電体の発見をめぐって", 日本物理学会誌, **51**, (1996), 633-638.
- [3] F. G. Galasso, " Structure, Properties and Preparation of Perovskite-Type Components", Pergamon Press Inc, (1969).
- [4] B. Jaffe, " Poling of Piezoelectric Ceramics", J. Can. Ceram. Soc., **50**, (1981), 23-28.
- [5] C. B. Sawyer and C. H. Tower, "Rochelle Salt as a Dielectric", Phys. Rev., **35**, (1930), 269-273.
- [6] A. Gruverman, O. Kolosov, J. Hatano, K. Takahashi, H. Tokumoto, " Domain structure and polarization reversal in ferroelectrics studied by atomic force microscopy", J. Vac. Sci. Technology. B: Microelectronics and Nanometer Structures, **13**, (1995), 1095-1099.
- [7] 土井 康弘, " 偏光と結晶光学", 共立出版, (1975).
- [8] Gerald Burns, " Solid State Physics ", Academic Press, (1985).
- [9] エミール・ウォルフ(著), 白井 智弘(訳), "光のコヒーレンスと偏光理論", 京都大学学術出版会, (2009).
- [10] S.-Y. Lu and R. A. Chipman, " Interpretation of mueller matrices based on polar decomposition ", J. Opt. Soc. Am. A, **13**, (1996), 1106-1113.

### 3章 ミュラー行列を用いた偏光計測法による強誘電体の光学特性評価

#### 3.1 緒言

本章では、強誘電体の光学特性の評価法として、偏光計測法の中でも特にミュラー行列を用いる手法を提案する。強誘電体は自発分極を持つために必ず異方性を示し、その光学特性を評価するためにはその異方性つまり偏光特性を考慮しなければならない。しかし、強誘電体の材料開発の現場ではそこまでは考慮されておらず、既報の研究論文でも屈折率の計測のみで評価している場合が多い[1, 2]。また、強誘電体を用いた光学デバイスでは、作製の容易さから強誘電性のセラミックスが多用されているが、セラミックスのような多結晶材料では材料の不均一性によって偏光解消が生じるため、一般に普及しているエリプソメトリなどではその偏光特性を精度よく測定することが必ずしもできない[3-6]。こうした強誘電体の光学特性に対する認識の不足と評価技術の遅れが強誘電体を用いた光学デバイスの高性能化を遅らせている一因とも思われる。

材料の偏光解消を含む全ての偏光特性を表すミュラー行列を測定するための偏光計をミュラー行列偏光計という[7]。ミュラー行列偏光計は様々な構成が報告されているが、どれも基本的な概念と構成は同じである。図 3.1 に、ミュラー行列偏光計の概念的な構成を示す。ミュラー行列偏光計は、光を任意の偏光状態に変換する偏光生成部(PSG: polarization state generator)と偏光状態を光強度に変換する偏光解析部(PSA: polarization state analyzer)を持ち、PSG と PSA で試料を挟み込む形となっている。光源からの光を PSA で任意の偏光に変換して試料に入射させ、試料から透過（もしくは反射）してきた光の偏光状態を PSA で光強度に変換し、光検出器で読み取り解析することで試料のミュラー行列を測定する。

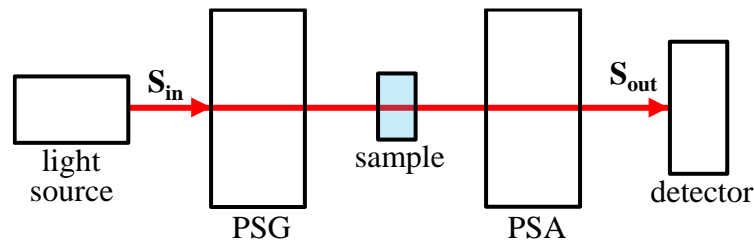


Fig. 3.1 Conceptual diagram of a Mueller matrix polarimeter.

本章では、1978年に Azzam らによって報告された、装置構成が簡便かつ測定精度に優れた偏光計として知られる 2 重回転位相子型偏光計(dual rotating-retarder polarimeter)を用いる[8]。3.2 節でこの偏光計の測定原理とキャリブレーションの方法を述べ、3.3 節で実際に構築した偏光計について詳述する。3.4 節では、原理検証実験として、透光性强誘電性セラミックスとしてよく知られているチタン酸ジルコン酸ランタン鉛(PLZT: Lead Lanthanum Zirconate Titanate)の全偏光特性の電場依存性を測定した結果を述べる。また、3.4.2 節では、その測定によって明らかになった複屈折性のメモリ効果を詳細に測定した結果を示す。

#### 3.2 2 重回転位相子型偏光計 [8, 9]

図 3.2 に、2 重回転位相子型偏光計の光学系を示す。この偏光計は、光源、偏光子(P)、2 枚の 1/4 波長板(QWP)、検光子(A)および光検出器で構成されている。偏光子と光源側の 1/4 波長板が

PSG 部であり，光検出器側の 1/4 波長板と検光子が PSA 部である．偏光子と検光子の透過軸方位を  $0^\circ$  とし，2 枚の 1/4 波長板を 1:5 の角速度比率で回転させながら光強度を取得し，その波形をフーリエ変換して解析することでミュラー行列を算出できる．この偏光計の利点は，光源の偏光状態および検出器の感度の偏光依存性を偏光子(P)と検光子(A)によって無視できる点にある．また，この偏光計のミュラー行列の測定精度は主に波長板の回転角の設定精度に依存し，なおかつ各偏光光学素子のキャリブレーション手法も確立されているため[10]，光弾性素子などを用いた他のミュラー行列偏光計に比べて安価な装置構成で測定精度を確保できる．

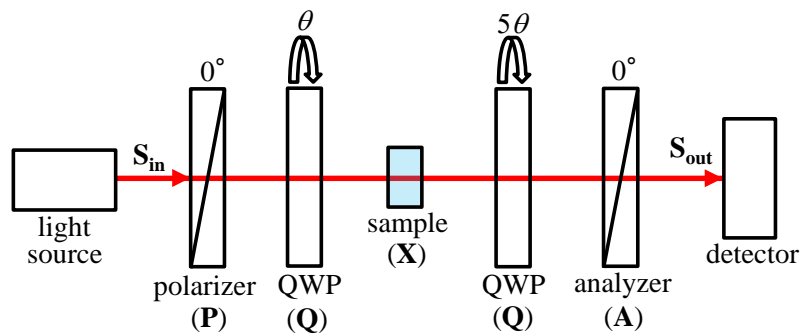


Fig. 3.2 Optical system of a dual rotating-retarder polarimeter.

### 3.2.1 ミュラー行列測定原理

2重回転位相子型偏光計は，図 3.2 に示すように，光源，偏光子(P)，2枚の 1/4 波長板(Q)，検光子(A)および光検出器からなる．偏光子の透過軸方位を  $0^\circ$  とし，2枚の 1/4 波長板の進相軸方位を  $90^\circ$ ，検光子の透過軸方位を  $0^\circ$  に合わせた後，2枚の 1/4 波長板を 1:5 の比率の角速度で回転させ，透過光強度の変化を測定する．透過光強度の変化の波形をフーリエ変換することで試料のミュラー行列が算出できる．

偏光子，1/4 波長板，試料および検光子のミュラー行列をそれぞれ **P**，**Q**，**M**，**A** とおくと，光源のストークスペクトル  $\mathbf{S}_{in}$  と出射光のストークスペクトル  $\mathbf{S}_{out}$  の関係はそれらのミュラー行列から，

$$\mathbf{S}_{out} = \mathbf{A} \cdot \mathbf{Q} \cdot \mathbf{M} \cdot \mathbf{Q} \cdot \mathbf{P} \cdot \mathbf{S}_{in}, \quad (3.1)$$

となる．ここで偏光子の透過軸と系の基準となる軸とのなす角を  $\theta$  とすると，偏光子のミュラー行列 **P** は，

$$\mathbf{P}(\theta) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \cos 2\theta & \sin 2\theta & 0 \\ \cos 2\theta & \cos^2 2\theta & \sin 2\theta \cos 2\theta & 0 \\ \sin 2\theta & \sin 2\theta \cos 2\theta & \sin^2 2\theta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (3.2)$$

である。また波長板も同様に、進相軸と系の基準軸とのなす角を $\theta$ 、進相軸と遅相軸との間に生じる位相差を $\psi$ とすると、そのミュラー行列 $\mathbf{Q}$ は、

$$\mathbf{Q}(\psi, \theta) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos^2 2\theta + \cos \psi \sin^2 2\theta & (1 - \cos \psi) \sin 2\theta \cos 2\theta & \sin \psi \sin 2\theta \\ 0 & (1 - \cos \psi) \sin 2\theta \cos 2\theta & \sin^2 2\theta + \cos \psi \cos^2 2\theta & -\sin \psi \cos 2\theta \\ 0 & -\sin \psi \sin 2\theta & \sin \psi \cos 2\theta & \cos \psi \end{pmatrix}, \quad (3.3)$$

である。したがって、式(3.1)は式(3.2)および式(3.3)を用いて、

$$\mathbf{S}_{\text{out}} = \mathbf{A}(0^\circ) \cdot \mathbf{Q}(90^\circ, 5\theta) \cdot \mathbf{M} \cdot \mathbf{Q}(90^\circ, \theta) \cdot \mathbf{P}(0^\circ) \cdot \mathbf{S}_{\text{in}}, \quad (3.4)$$

すなわち、

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} S_{0\text{out}} \\ S_{1\text{out}} \\ S_{2\text{out}} \\ S_{3\text{out}} \end{bmatrix} &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos^2 10\theta & \sin 10\theta \cos 10\theta & \sin 10\theta \\ 0 & \sin 10\theta \cos 10\theta & \sin^2 10\theta & -\cos 10\theta \\ 0 & -\sin 10\theta & \cos 10\theta & 0 \end{bmatrix} \\ &\cdot \begin{bmatrix} m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos^2 2\theta & \sin 2\theta \cos 2\theta & \sin 2\theta \\ 0 & \sin 2\theta \cos 2\theta & \sin^2 2\theta & -\cos 2\theta \\ 0 & -\sin 2\theta & \cos 2\theta & 0 \end{bmatrix} \\ &\cdot \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} S_{0\text{in}} \\ S_{1\text{in}} \\ S_{2\text{in}} \\ S_{3\text{in}} \end{bmatrix}, \quad (3.5) \end{aligned}$$



と書ける. このとき, 光検出器で検出される光強度  $I_{det}$  は出射光のストークスベクトル  $\mathbf{S}_{out}$  の第 1 番目の要素  $S_{0out}$  である. よって, 式(3.5)の行列式を計算して, 正弦と余弦の項にまとめると  $I_{det}$  は,

$$I_{det} = \frac{1}{4} \left\{ a_0 + \sum_{n=1}^{12} (a_n \cos 2n\theta + b_n \sin 2n\theta) \right\} (S_{1in} + S_{2in}), \quad (3.6)$$

と求まる. このとき, 式(3.6)の各係数は,

$$\left. \begin{aligned} a_0 &= m_{00} + \frac{1}{2}m_{01} + \frac{1}{2}m_{10} + \frac{1}{4}m_{11} \\ a_2 &= \frac{1}{2}m_{01} + \frac{1}{4}m_{11} \\ a_3 &= \frac{1}{4}m_{32} \\ a_4 &= -\frac{1}{2}m_{33} \\ a_6 &= \frac{1}{2}m_{33} \\ a_7 &= -\frac{1}{4}m_{32} \\ a_8 &= \frac{1}{8}m_{11} + \frac{1}{8}m_{22} \\ a_9 &= -\frac{1}{4}m_{23} \\ a_{10} &= \frac{1}{2}m_{10} + \frac{1}{4}m_{11} \\ a_{11} &= \frac{1}{4}m_{23} \\ a_{12} &= \frac{1}{8}m_{11} - \frac{1}{8}m_{22} \\ b_1 &= -m_{03} - \frac{1}{2}m_{13} \\ b_2 &= \frac{1}{2}m_{02} + \frac{1}{4}m_{12} \\ b_3 &= \frac{1}{4}m_{31} \\ b_5 &= m_{30} + \frac{1}{2}m_{31} \\ b_7 &= \frac{1}{4}m_{31} \end{aligned} \right\}, (3.7)$$

$$\begin{aligned}
b_8 &= -\frac{1}{8}m_{12} + \frac{1}{8}m_{21} \\
b_9 &= \frac{1}{4}m_{13} \\
b_{10} &= \frac{1}{2}m_{20} + \frac{1}{4}m_{21} \\
b_{11} &= -\frac{1}{4}m_{13} \\
b_{12} &= \frac{1}{8}m_{12} + \frac{1}{8}m_{21}
\end{aligned}$$

である．光源のストークスペクトル  $\mathbf{S}_{in}$  は一定なので式(3.6)を規格化し，

$$I_{det} = a_0 + \sum_{n=1}^{12} (a_n \cos 2n\theta + b_n \sin 2n\theta), \quad (3.8)$$

と置ける．式(3.8)は試料のミュラー行列の要素を係数とし，1/4 波長板の回転角  $\theta$  を変数としたフーリエ級数の形をしている．よって，回転角  $\theta$  により変化する光強度の波形をフーリエ変換して，波形の各周波数成分における振幅の大きさ，すなわちスペクトルを得ると，得られたスペクトルが式(3.8)の各係数と対応している．そこで式(3.7)を考慮して，各ミュラー行列の要素を式(3.8)の係数を用いて表すと，

$$\begin{aligned}
m_{00} &= a_0 - a_2 + a_8 - a_{10} + a_{12} \\
m_{01} &= 2(a_2 - a_8 - a_{12}) \\
m_{02} &= 2(b_2 - b_8 - b_{12}) \\
m_{03} &= -b_1 - b_9 + b_{11} \\
m_{10} &= 2(-a_2 + a_{10} - a_{12}) \\
m_{11} &= 4(a_8 + a_{12}) \\
m_{12} &= 4(-b_8 + b_{12}) \\
m_{13} &= 2(b_9 - b_{11}) \\
m_{20} &= 2(-b_8 + b_{10} - b_{12}) \\
m_{21} &= 4(b_8 + b_{12}) \\
m_{22} &= 4(a_8 - a_{12}) \\
m_{23} &= 2(-a_9 + a_{11}) \\
m_{30} &= -b_3 + b_5 - b_7 \\
m_{31} &= 2(b_3 + b_7)
\end{aligned} \quad (3.9)$$

$$m_{32} = 2(a_3 - a_7)$$

$$m_{33} = -a_4 + a_6$$

となる．すなわち，測定で得た光強度の波形をフーリエ変換して得られた各周波数の係数値（スペクトル）を式(3.9)に代入することで，試料のミュラー行列が求まる．

以上の原理からミュラー行列を算出するため，1/4 波長板の回転角の比率は 1:5 でなくとも，式(3.8)においてミュラー行列の決定に十分な数の項が得られるような比率であればよい．本研究では，1:5 の比率を用いる．

### 3.2.2 キャリブレーションの方法

2 重回転位相子型偏光計で測定を行うとき，最初に偏光子，1/4 波長板および検光子の光学軸を揃える必要がある．また，1/4 波長板も透過光に波長の 1/4 の位相差を正確に与えなければならない．しかし，全ての光学軸を完全には揃えることはできず，1/4 波長板も設定された波長の透過光に正確に  $\lambda/4$  の位相差を与えられるとは限らない．このように，2 重回転位相子型偏光計で測定したミュラー行列には光学系の方位角や位相差に関する誤差が含まれ，その誤差を補正する必要がある．そこで，Goldstein が提案した手法を用いる[10]．

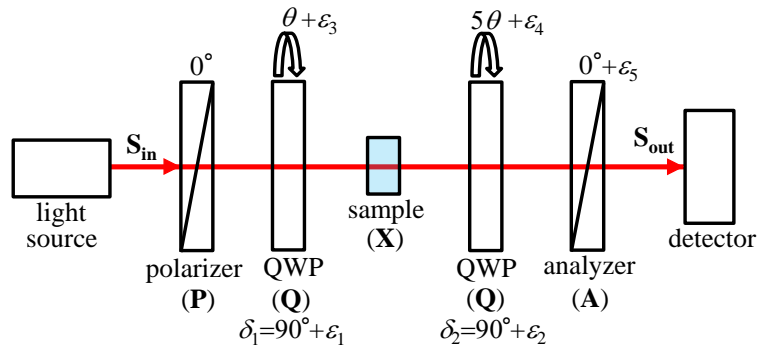


Fig. 3.3 Significant error sources in a dual rotating-retarder polarimeter.

Goldstein の提案手法では，偏光光学素子の光学軸の方位設定誤差および 2 枚の 1/4 波長板の方位設定誤差と位相差誤差を補正する．図 3.3 に，それら対象となる誤差をまとめて示す．2 枚の 1/4 波長板の位相誤差を  $\epsilon_1, \epsilon_2$  とし，2 枚の 1/4 波長板および検光子の光学軸の方位設定誤差をそれぞれ  $\epsilon_3, \epsilon_4$  および  $\epsilon_5$  とすると，式(3.1)は  $\delta_1=90^\circ + \epsilon_1, \delta_2=90^\circ + \epsilon_2, \epsilon_3, \epsilon_4$  および  $\epsilon_5$  を用いて，

$$\mathbf{S}_{\text{out}} = \mathbf{A}(\epsilon_5) \cdot \mathbf{Q}(90^\circ + \epsilon_2, 5\theta + \epsilon_4) \cdot \mathbf{M} \cdot \mathbf{Q}(90^\circ + \epsilon_1, \theta + \epsilon_3) \cdot \mathbf{P}(0^\circ) \cdot \mathbf{S}_{\text{in}}, \quad (3.10)$$

と書きかえられる．それに伴い式(3.7)も同様に，

$$\begin{aligned}
a &= m_{00} + \frac{1}{2}\beta_3 m_{01} + \frac{1}{2}\beta_4 \cos 2\varepsilon_5 m_{10} + \frac{1}{4}\beta_3\beta_4 \cos 2\varepsilon_5 m_{11} + \frac{1}{2}\beta_4 \sin 2\varepsilon_5 m_{20} \\
&\quad + \frac{1}{4}\beta_3\beta_4 \sin 2\varepsilon_5 m_{21} \\
a_1 &= \sin \delta_1 \sin 2\varepsilon_3 m_{03} + \frac{1}{2}\beta_4 \sin \delta_1 \sin 2\varepsilon_3 \cos 2\varepsilon_5 m_{13} + \frac{1}{2}\beta_4 \sin \delta_1 \sin 2\varepsilon_3 \sin 2\varepsilon_5 m_{23} \\
a_3 &= -\frac{1}{2}\beta_1 \sin \delta_2 \sin \alpha_3 m_{31} - \frac{1}{2}\beta_1 \sin \delta_2 \sin \alpha_3 m_{32} \\
a_4 &= -\frac{1}{2}\sin \delta_1 \sin \delta_2 \cos \alpha_1 m_{33} \\
a_5 &= \sin \delta_2 \sin \alpha_5 m_{30} + \frac{1}{2}\beta_3 \sin \delta_2 \sin \alpha_5 m_{31} \\
a_6 &= \frac{1}{2}\sin \delta_1 \sin \delta_2 \cos \alpha_2 m_{33} \\
a_7 &= -\frac{1}{4}\beta_1 \sin \delta_2 \sin \alpha_4 m_{31} + \frac{1}{4}\beta_1 \sin \delta_2 \cos \alpha_4 m_{32} \\
a_8 &= \frac{1}{8}\beta_1\beta_2 \cos \alpha_9 (m_{11} + m_{22}) + \frac{1}{8}\beta_1\beta_2 \cos \alpha_9 (m_{21} + m_{12}) \\
a_9 &= \frac{1}{4}\beta_2 \sin \delta_1 \sin \alpha_6 m_{13} + \frac{1}{4}\beta_2 \sin \delta_1 \cos \alpha_6 m_{23} \\
a_{10} &= \frac{1}{2}\beta_2 \cos \alpha_{11} m_{10} + \frac{1}{4}\beta_2\beta_3 \cos \alpha_{11} m_{11} + \frac{1}{2}\beta_2 \sin \alpha_{11} m_{20} + \frac{1}{4}\beta_2\beta_3 \sin \alpha_{11} m_{21} \\
a_{11} &= -\frac{1}{4}\beta_2 \sin \delta_1 \sin \alpha_7 m_{13} - \frac{1}{4}\beta_2 \sin \delta_1 \cos \alpha_7 m_{23} \\
a_{12} &= \frac{1}{8}\beta_1\beta_2 \cos \alpha_{10} (m_{11} - m_{22}) + \frac{1}{8}\beta_1\beta_2 \sin \alpha_{10} (m_{12} + m_{21}) \\
b_1 &= \frac{1}{2}\sin \delta_1 \cos 2\varepsilon_3 m_{03} + \frac{1}{2}\beta_4 \sin \delta_1 \cos 2\varepsilon_3 \cos 2\varepsilon_5 m_{13} + \frac{1}{2}\beta_4 \sin \delta_1 \cos 2\varepsilon_3 \sin 2\varepsilon_5 m_{23} \\
b_2 &= -\frac{1}{2}\beta_1 \sin 4\varepsilon_3 m_{01} + \frac{1}{2}\beta_1 \cos 4\varepsilon_3 m_{02} + \frac{1}{4}\beta_1\beta_4 \cos 4\varepsilon_3 \cos 2\varepsilon_5 m_{12} \\
&\quad - \frac{1}{2}\beta_1\beta_4 \sin 4\varepsilon_3 \cos 2\varepsilon_5 m_{11} + \frac{1}{4}\beta_1\beta_4 \cos 4\varepsilon_3 \sin 2\varepsilon_5 m_{22} - \frac{1}{4}\beta_1\beta_4 \sin 4\varepsilon_3 \sin 2\varepsilon_5 m_{21} \\
b_3 &= -\frac{1}{4}\beta_1 \sin \delta_2 \cos \alpha_3 m_{31} + \frac{1}{4}\beta_1 \sin \delta_2 \sin \alpha_3 m_{32} \\
b_4 &= \frac{1}{2}\sin \delta_1 \sin \delta_2 \sin \alpha_1 m_{33} \\
b_5 &= -\sin \delta_2 \cos \alpha_5 m_{41} - \frac{1}{2}\beta_3 \sin \delta_2 \cos \alpha_5 m_{31} \\
b_6 &= -\frac{1}{2}\sin \delta_1 \sin \delta_2 \sin \alpha_2 m_{33} \\
b_7 &= -\frac{1}{4}\beta_1 \sin \delta_2 \cos \alpha_4 m_{42} - \frac{1}{4}\beta_1 \sin \delta_2 \sin \alpha_4 m_{32} \\
b_8 &= -\frac{1}{8}\beta_1\beta_2 \sin \alpha_9 (m_{11} + m_{22}) - \frac{1}{8}\beta_1\beta_2 \cos \alpha_9 (m_{12} - m_{21})
\end{aligned} \tag{3.11}$$

$$\begin{aligned}
b_9 &= -\frac{1}{4}\beta_2 \sin \delta_1 \cos \alpha_6 m_{13} + \frac{1}{4}\beta_2 \sin \delta_1 \cos \alpha_6 m_{23} \\
b_{10} &= -\frac{1}{2}\beta_2 \sin \alpha_{11} m_{10} - \frac{1}{4}\beta_2 \beta_3 \sin \alpha_{11} m_{11} + \frac{1}{2}\beta_2 \cos \alpha_{11} m_{20} + \frac{1}{4}\beta_2 \beta_3 \cos \alpha_{11} m_{21} \\
b_{11} &= \frac{1}{4}\beta_2 \sin \delta_1 \cos \alpha_7 m_{13} - \frac{1}{4}\beta_2 \sin \delta_1 \sin \alpha_7 m_{23} \\
b_{12} &= -\frac{1}{8}\beta_1 \beta_2 \sin \alpha_{10} (m_{11} - m_{22}) + \frac{1}{8}\beta_1 \beta_2 \cos \alpha_{10} (m_{12} + m_{21})
\end{aligned}$$

と書きかえられる。ここで、

$$\begin{aligned}
\beta_1 &= 1 - \cos \delta_1 \\
\beta_2 &= 1 - \cos \delta_2 \\
\beta_3 &= 1 + \cos \delta_1 \\
\beta_4 &= 1 + \cos \delta_2 \\
\alpha_1 &= 2\varepsilon_4 - 2\varepsilon_3 - 2\varepsilon_5 \\
\alpha_2 &= 2\varepsilon_4 + 2\varepsilon_3 - 2\varepsilon_5 \\
\alpha_3 &= 2\varepsilon_4 - 4\varepsilon_3 - 2\varepsilon_5 \\
\alpha_4 &= 2\varepsilon_4 + 4\varepsilon_3 - 2\varepsilon_5 \\
\alpha_5 &= 2\varepsilon_5 - 2\varepsilon_4 \\
\alpha_6 &= 2\varepsilon_5 - 4\varepsilon_4 + 2\varepsilon_3 \\
\alpha_7 &= 2\varepsilon_5 - 4\varepsilon_4 - 2\varepsilon_3 \\
\alpha_8 &= -2\varepsilon_5 + 4\varepsilon_4 - 2\varepsilon_3 = -\alpha_6 \\
\alpha_9 &= 4\varepsilon_4 - 4\varepsilon_3 - 2\varepsilon_5 \\
\alpha_{10} &= 4\varepsilon_4 + 2\varepsilon_3 - 2\varepsilon_5 \\
\alpha_{11} &= 4\varepsilon_4 - 2\varepsilon_5
\end{aligned} \tag{3.12}$$

である。一般に、試料を設置しない状態でミュラー行列を算出することを Null 測定と呼んでいるが、その Null 測定では透過光の偏光状態は全く変化しないため、算出されるミュラー行列  $\mathbf{M}$  は単位行列となる。したがって、Null 計測で得た光強度の波形の歪みは測定系にのみ依存しており、

その波形をフーリエ変換して得られたスペクトルには測定系の誤差の情報が含まれる。測定系の誤差の大部分は光学系のそれと仮定して、式(3.11)の行列  $\mathbf{M}$  の対角成分に 1 を、それ以外の成分に 0 を代入すると、光学系の誤差  $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3, \varepsilon_4$  および  $\varepsilon_5$  は以下のように求められる。

$$\begin{aligned}
\delta_1 &= \cos^{-1} \left( \frac{a_{10} \cos \alpha_9 - a_8 \cos \alpha_{11}}{a_{10} \cos \alpha_9 + a_8 \cos \alpha_{11}} \right) \\
\delta_2 &= \cos^{-1} \left( \frac{a_2 \cos \alpha_9 - a_8 \cos(4\varepsilon_3 - 2\varepsilon_5)}{a_2 \cos \alpha_9 + a_8 \cos(4\varepsilon_3 - 2\varepsilon_5)} \right) \\
\varepsilon_3 &= \frac{1}{4} \tan^{-1} \left( \frac{b_8}{a_8} \right) - \frac{1}{4} \tan^{-1} \left( \frac{b_{10}}{a_{10}} \right) \\
\varepsilon_4 &= \frac{1}{2} \tan^{-1} \left( \frac{b_2}{a_2} \right) - \frac{1}{2} \tan^{-1} \left( \frac{b_6}{a_6} \right) + \frac{1}{4} \tan^{-1} \left( \frac{b_8}{a_8} \right) - \frac{1}{4} \tan^{-1} \left( \frac{b_{10}}{a_{10}} \right) \\
\varepsilon_5 &= \frac{1}{2} \tan^{-1} \left( \frac{b_2}{a_2} \right) + \frac{1}{2} \tan^{-1} \left( \frac{b_8}{a_8} \right) - \frac{1}{2} \tan^{-1} \left( \frac{b_{10}}{a_{10}} \right)
\end{aligned} \tag{3.13}$$

また、式(3.11)から、その誤差を考慮したミュラー行列の各要素は、以下のように求められる。

$$\begin{aligned}
m_{00} &= 4a_0 - \frac{1}{2} \beta_3 m_{01} - \frac{1}{2} \beta_4 \cos 2\varepsilon_5 m_{10} - \frac{1}{4} \beta_3 \beta_4 \cos 2\varepsilon_5 m_{11} \\
&\quad - \frac{1}{2} \beta_4 \sin 2\varepsilon_5 m_{20} - \frac{1}{4} \beta_3 \beta_4 \sin 2\varepsilon_5 m_{21} \\
m_{01} &= \frac{16a_2 \cos 4\varepsilon_3 - 16b_2 \sin 4\varepsilon_3 - \beta_1 \beta_4 \cos 2\varepsilon_5 m_{11} - \beta_1 \beta_4 \sin 2\varepsilon_5 m_{21}}{2\beta_1} \\
m_{02} &= \frac{16a_2 \sin 4\varepsilon_3 + 16b_2 \cos 4\varepsilon_3 - \beta_1 \beta_4 \cos 2\varepsilon_5 m_{12} - \beta_1 \beta_4 \sin 2\varepsilon_5 m_{22}}{2\beta_1} \\
m_{03} &= -\frac{\beta_4 \cos 2\varepsilon_5 m_{13}}{2} + \frac{4b_1}{\cos 2\varepsilon_3 \sin \delta_1} - \frac{\beta_4 \sin 2\varepsilon_5 m_{23}}{2} \\
m_{10} &= \frac{16a_{10} \cos \alpha_{11} - 16b_{10} \sin \alpha_{11} - \beta_2 \beta_3 m_{11}}{2\beta_2} \\
m_{11} &= 16 \frac{a_8 \cos \alpha_9 + a_{12} \cos \alpha_{10} - b_8 \sin \alpha_9 - b_{12} \sin \alpha_{10}}{\beta_1 \beta_2} \\
m_{12} &= 16 \frac{-a_8 \sin \alpha_9 + a_{12} \sin \alpha_{10} - b_8 \cos \alpha_9 + b_{12} \cos \alpha_{10}}{\beta_1 \beta_2} \\
m_{13} &= 8 \frac{a_9 \sin \alpha_6 - b_9 \cos \alpha_6 - a_{11} \sin \alpha_7 + b_{11} \cos \alpha_7}{\beta_2 \sin \delta_1}
\end{aligned} \tag{3.14}$$

$$\begin{aligned}
m_{20} &= \frac{16a_{10} \sin \alpha_{11} + 16b_{10} \cos \alpha_{11} - \beta_2 \beta_3 m_{21}}{2\beta_2} \\
m_{21} &= 16 \frac{a_8 \sin \alpha_9 + a_{12} \sin \alpha_{10} + b_8 \cos \alpha_9 + b_{12} \cos \alpha_{10}}{\beta_1 \beta_2} \\
m_{22} &= 16 \frac{a_8 \cos \alpha_9 - a_{12} \cos \alpha_{10} - b_8 \sin \alpha_9 + b_{12} \cos \alpha_{10}}{\beta_1 \beta_2} \\
m_{23} &= 8 \frac{a_9 \cos \alpha_6 + b_9 \sin \alpha_6 - a_{11} \cos \alpha_7 - b_{11} \cos \alpha_7}{\beta_2 \sin \delta_1} \\
m_{30} &= -\frac{\beta_3 m_{31}}{2} - \frac{4b_5}{\cos \alpha_5 \sin \delta_2} \\
m_{31} &= -8 \frac{a_3 \sin \alpha_3 + b_3 \cos \alpha_3 + a_7 \sin \alpha_4 + b_7 \cos \alpha_4}{\beta_1 \sin \delta_2} \\
m_{32} &= -8 \frac{a_3 \cos \alpha_3 - b_3 \sin \alpha_3 - a_7 \cos \alpha_4 + b_7 \sin \alpha_4}{\beta_1 \sin \delta_2} \\
m_{33} &= \frac{4}{\sin \delta_1 \sin \delta_2} \left( -\frac{a_4}{\cos \alpha_1} + \frac{a_6}{\cos \alpha_2} \right)
\end{aligned}$$

よって、Null 測定で算出した光学系の誤差  $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3, \varepsilon_4, \varepsilon_5$  と、試料の測定で得たスペクトルから、式(3.14)によって光学系の誤差を補正したミュラー行列を得ることができる。

### 3.3 装置構成および評価

本節では前節で述べた 2 重回転位相子型偏光計の光学系に基づき実際に構築したミュラー行列偏光計の構成と測定手順を 3.3.1 節で述べ、次に作製した偏光計の精度検定の結果を 3.2.2 節で述べる。

#### 3.3.1 装置の構成と測定手順

図 3.5 にミュラー行列偏光計のブロック図を、図 3.6 に作製したミュラー行列偏光計の光学系の写真を示す。また、表 3.1 に、構成部品とその仕様を示す。

光源として、波長 635nm の半導体レーザー(LD)を用いた。その出射光は偏光子であるグラントムソンプリズムを透過し直線偏光となる。次に、ステップ角  $0.0025^\circ$  のステップングモータで回転する設計波長 632.8nm の 1/4 波長板を透過し、楕円偏光となった光が試料に入射する。試料からの透過光は、もう 1 つのステップングモータで回転する 1/4 波長板を透過し、検光子であるグラントムソンプリズムに入射する。そして、検光子からの透過光強度をシリコンフォトダイオードで検出し、デジタルマルチメータでデジタルデータに変換した後コンピュータに読み込む。光強度の読み込みと 2 つのステップングモータの回転はコンピュータで制御する。制御のプログラムに

は LabView(National Instruments Co.)を使用した. ここでは, ステッピングモータの回転制御と測定のデータ読み込みだけでなく, 測定値のフーリエ変換, 光学系の誤差を補正したミュラー行列の算出, ミュラー行列の再構成まで行うようにした. したがって, 測定を開始すれば試料の偏光特性の算出までは完全に自動的に行える.

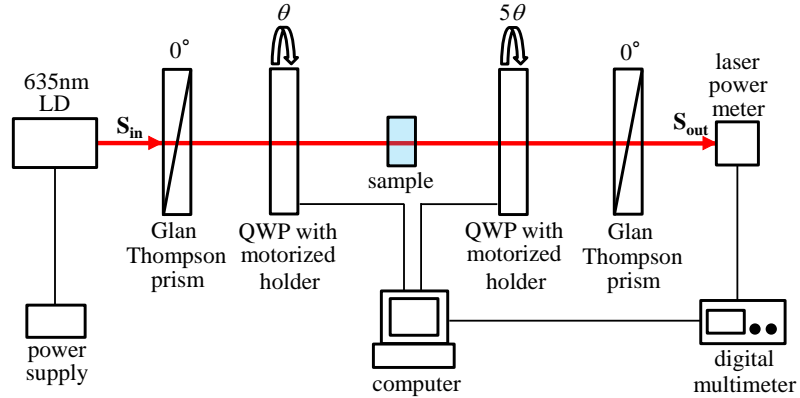


Fig. 3.5 Block diagram of an experimental setup.

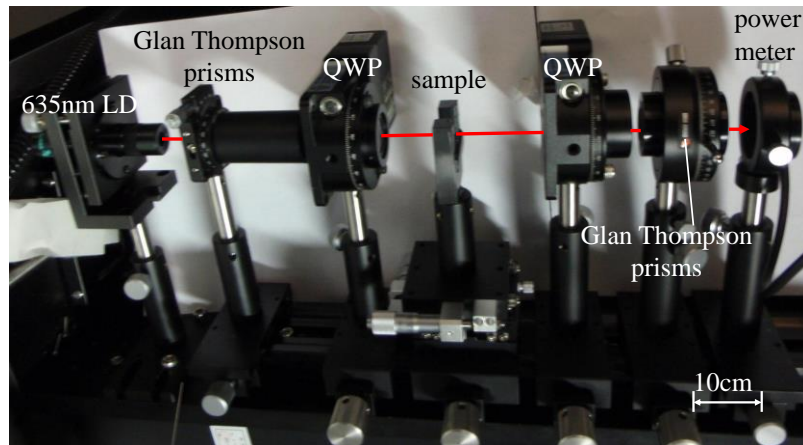


Fig. 3.6 Optical setup of a Mueller matrix polarimeter.



Table 3.1 Components of the measurement system.

component	vender	model	specific
laser diode	NEOARK Co.	LDP2-6705B	wavelength: 635nm power: 35mW
laser diode power supply	NEOARK Co.	DPS-2002	output current: 0~200mA
laser power meter	NEOARK Co.	PM-210	Indication: analogue
detector	NEOARK Co.	PM2(Silicon)	effective aperture: 19mm directly detective wavelength: 632.8nm
digital multimeter	Hewlett-Packard Development Co.	34401A	A-D linearity: 0.0002%-0.0001%
1/4 wave plate	Sigma Koki Co.,Ltd.	WPQ-6328-4M	material: crystalline quartz wavelength: 632.8nm retardance accuracy: $< \lambda/300$
Glan Thompson prisms	Sigma Koki Co.,Ltd.	GTPC-10-25SN	wavelength range: 320nm~2.3 $\mu$ m extinction ratio: $5 \times 10^{-5}$
motorized holder	Sigma Koki Co.,Ltd.	SGSP-60-YAW-OB	step angle: 0.0025° positional repeatability: 0.02°

### 3.3.2 測定精度の評価

作製した偏光計の精度の確認のため、まず Null 測定を行い、それで得たミュラー行列と単位行列とを比較した。次に偏光特性が既知である 1/4 波長板の偏光特性を測定し、偏光特性の測定精度を評価した。

#### (a) Null 計測による測定精度の評価

精度の評価の前段階として、1 枚目の 1/4 波長板が 360°回転する間に光強度を取得する回数であるサンプリングデータ点数の最適化を行った。一般にデータ点数が多いほど精度は向上するが、

測定時間も長くなる。また、ステッピングモータの回転角度の分解にも下限がある。したがって、最適なサンプリング数を決定する必要があった。

測定データをフーリエ変換するのに高速フーリエ変換(FFT)を用いるため、データ点数は2<sup>n</sup>点とするのが望ましい。また、データ点数が32点未満では4×4の16要素からなるミュラー行列を決定するには不十分である。よって、サンプリング数が32点、64点、128点、256点および512点の場合において、試料を設置しない状態で10回測定を行い、それから直ちに得られたミュラー行列と単位行列とを比較した。そうして行列の要素ごとに標準偏差を求め、最も標準偏差の大きかった要素のそれをデータ点数に対してプロットした結果を図3.9に示す。これより、データ点数256以上で標準偏差がほぼ一定値となったため、測定に用いるデータ点数を256とした。

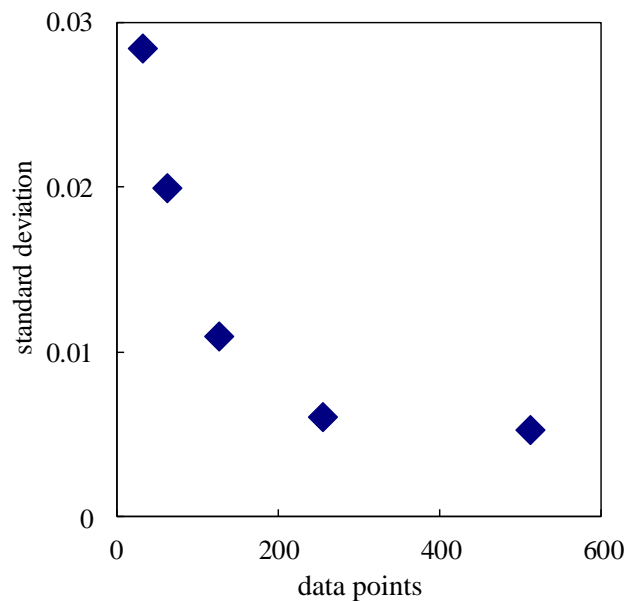


Fig. 3.9 A plot of the standard deviation versus the number of data points.

データ点数256の測定で得られるミュラー行列の精度を検証するため、Null測定を10回行った。その結果得られたミュラー行列  $\mathbf{M}$  は補正前で、

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} 1.000 \pm 0.001 & 0.023 & -0.023 \pm 0.001 & 0 \pm 0.001 \\ -0.021 & 0.939 \pm 0.001 & -0.399 & -0.017 \\ -0.003 & -0.394 \pm 0.001 & 0.956 \pm 0.001 & -0.001 \\ 0 \pm 0.001 & 0.001 \pm 0.001 & 0.012 & 0.966 \pm 0.001 \end{pmatrix}, \quad (3.15)$$

となり、補正後は、

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} 0.998 \pm 0.013 & 0.005 \pm 0.004 & 0.003 \pm 0.001 & -0.001 \pm 0.001 \\ 0.001 \pm 0.004 & 0.987 \pm 0.010 & -0.006 \pm 0.003 & -0.014 \pm 0.025 \\ 0.001 \pm 0.001 & 0.003 \pm 0.003 & 0.994 \pm 0.002 & -0.008 \pm 0.014 \\ 0 \pm 0.001 & 0.001 \pm 0.003 & 0.013 \pm 0.014 & 0.986 \pm 0.002 \end{pmatrix}, \quad (3.16)$$

となった。これより、補正後のミューラー行列の単位行列からの誤差は1.5%以内であることが確認された。

### (b) 1/4 波長板による精度の評価

次に、装置の精度と正確度の確認のため、偏光特性が既知である1/4波長板を測定した。測定した波長板は装置に用いているものと同じ、人工水晶製の設計波長632.8 nmのものである。

まず、ミューラー行列偏光計の精度検定を行った。1/4波長板の進相軸方位を0°から180°まで10°ずつ回転させて、ミューラー行列を算出した。図3.10に、測定したミューラー行列から求めた複屈折位相差 $\delta$ および方位角 $\varphi$ を示す。点が測定値、実線が理論値である。測定値の理論値からの標準偏差は、複屈折位相差で $\pm 1.5^\circ$ 、方位角で $\pm 2.0^\circ$ であった。

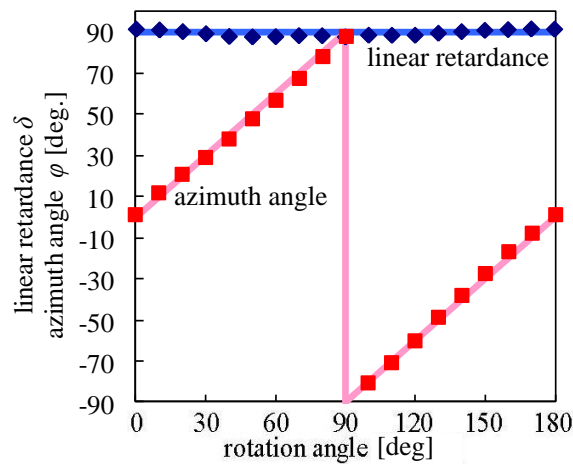


Fig. 3.10 Linear retardance  $\delta$  and azimuth angle  $\varphi$  of the quarter-wave plate (QWP) as a function of the orientation angle of the fast axis of the QWP, which were obtained from the Mueller matrix polarimeter constructed.

## 3.4 測定結果および考察

本節では、代表的な強誘電体であるチタン酸ジルコン酸ランタン鉛(PLZT: Lead Lanthanum Zirconate Titanate)の全偏光特性の測定結果を示す。まず、3.4.1節でPLZTの全偏光特性の電場依存性の測定結果を示す。次に、3.4.2節ではその測定で明らかになった複屈折性のメモリ効果をさらに詳細に測定した結果を示す。

### 3.4.1 PLZT の全偏光特性の電場依存性

ミューラー行列偏光計を用いて PLZT の全偏光特性の印加電場に対する依存性を測定した。図 3.11 に測定した PLZT の写真を示す。測定した PLZT は、フルウチ化学株式会社製の  $5.0\text{mm} \times 2.0\text{mm} \times 0.5\text{mm}$  のバルク体の焼結セラミックスで、その組成は  $(\text{Pb } 0.911 \text{ La } 0.089)(\text{Zr } 0.65 \text{ Ti } 0.35)$  である。 $5.0\text{mm} \times 0.5\text{mm}$  の面に電極が塗布されており、レーザー光はその面に対して垂直に入射させた。試料面上での光のスポットは  $1.5\text{mm} \times 1.5\text{mm}$  で、これがそのまま測定領域となる。図 3.12 に、ソーヤ・タワー法[11]を用いて測定した履歴曲線を示す。印加電場に対する分極の勾配の変化が生じる電圧がおよそ  $3.0\text{kV/cm}$  であることから、それが分極反転の生じる抗電場であることが推測される。また、電場を印加していないときの分極が小さいことから、自発分極が小さく 2 次の電気光学効果が強い PLZT であることが分かる。また、図 4.3 に、走査電子顕微鏡で取得した PLZT の組成差像を示す。結晶粒が観察でき、粒径はおよそ  $1\mu\text{m}$  から  $5\mu\text{m}$  であった。

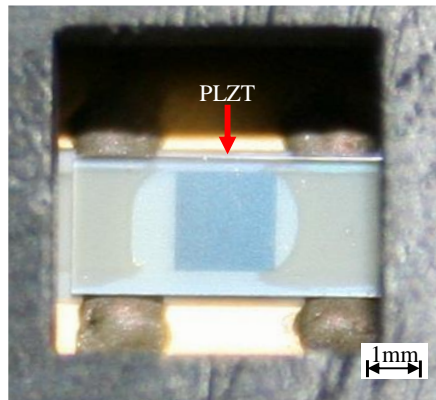


Fig. 3.11 Photograph of the PLZT-8.9/65/35 measured.

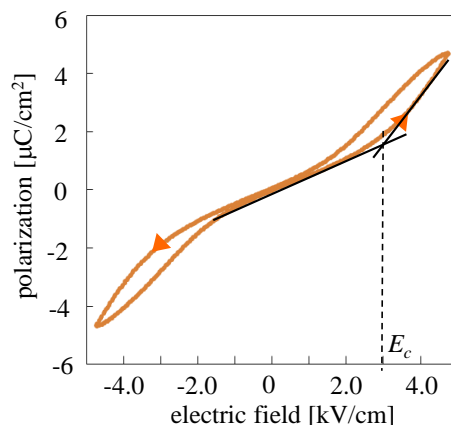


Fig. 3.12 The hysteresis curve of the PLZT-8.9/65/35 used for the measurement.

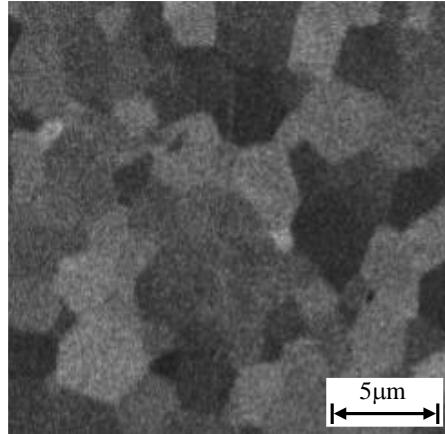


Fig. 3.13 Image of PLZT-8.9/65/35 taken by a scanning electron microscope.

この PLZT に、0 kV/cm から 4.75 kV/cm までの往復電場を印加し、各電圧でのミュラー行列を算出した。そのミュラー行列から各偏光特性を再構成することで、それらの履歴曲線を取得した。ここで取得した偏光特性は、1.5mm × 1.5mm の測定領域の分布の平均となる。図 3.14 は複屈折性を表す位相差  $\delta$  および方位角  $\varphi$  の履歴曲線である。図 3.15 は偏光解消を表す偏光解消度  $\Delta$  の履歴曲線である。図 3.16 は二色性および円二色性を表すダイアテニュエーション  $D$  の履歴曲線である。そして、図 3.17 は旋光性を表す旋光角  $\psi$  の履歴曲線である。これらの結果から、PLZT の全偏光特性は印加電場の上昇時と下降時で値が一致しないヒステリシス特性を示すことが分かる。

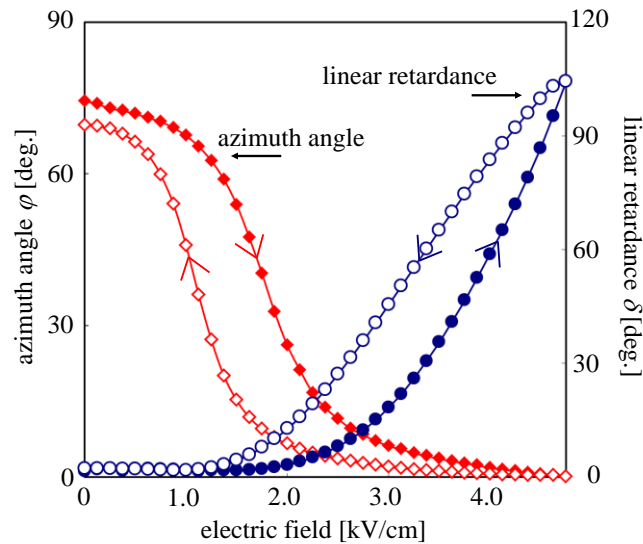


Fig. 3.14 Hysteresis curves of PLZT-8.9/65/35 for the linear retardance  $\delta$  and the azimuth angle  $\varphi$ .

最初に、強誘電体の光学的異方性に直接関係する複屈折性について議論する。図 3.14 の複屈折位相差に着目すると、印加電場が 0 kV/cm から 1.0 kV/cm の間では、位相差が  $2.0^\circ \pm 0.16^\circ$  と非常に

小さな値を示すのに対し、印加電場が  $2.0 \text{ kV/cm}$  を超えると急激に増加して最大印加電場の  $4.75 \text{ kV/cm}$  では  $104.3^\circ$  となる。この位相差の変化から、測定した PLZT は二次の電気光学効果が一次の電気光学効果より強いことが確認できる。電場の減少過程では、増大過程と比べて緩やかな減少を示し履歴現象が現れるが、 $1.0 \text{ kV/cm}$  付近で両者の値は一致して初期値に戻っている。一方、方位角は、印加電場の増加に伴って、 $0 \text{ kV/cm}$  から  $1.0 \text{ kV/cm}$  までは緩やかに電場方向に追従していく。そして、上記の位相差が大きくなり始める  $1.0 \text{ kV/cm}$  以上では急激に電場方向に漸近していく。ここから印加電場を減少させていくと、方位角も履歴を示し、 $0 \text{ kV/cm}$  となっても初期値値と一致せず  $74.4^\circ$  から  $69.3^\circ$  に変化した。これらの現象は電気光学効果と分域構造の変化によって説明できる。 $0 \text{ kV/cm}$  での方位角の値は、強誘電体が自発分極の方向を進相軸とする複屈折性を持つことから、強誘電体の自発分極の向きを示している。ここから印加電場を大きくしていくと、電気光学効果によって電場方向を進相軸とする複屈折性が生じる。印加電場の増加にともなう電気光学効果によって生じる複屈折位相差も大きくなるため、方位角が徐々に印加電場の方向に変化していく。二次の電気光学効果によって位相差が急激に大きくなる  $2.0 \text{ kV/cm}$  以上では進相軸の配向は一層加速され電場の方向となる。最大印加電場  $4.75 \text{ kV/cm}$  では、抗電場  $3.0 \text{ kV/cm}$  よりも大きいため、分極反転が生じて分域構造が変化する。そのような分極反転が生じると、一次の電気光学効果の比例定数は負から正に符号が反転する。そのため、電場を減少させても位相差は同じ値をとらずに電場増加時に比べて大きな値をとる。また、方位角は分域構造の変化を反映して電場の方向により近い値にシフトする。

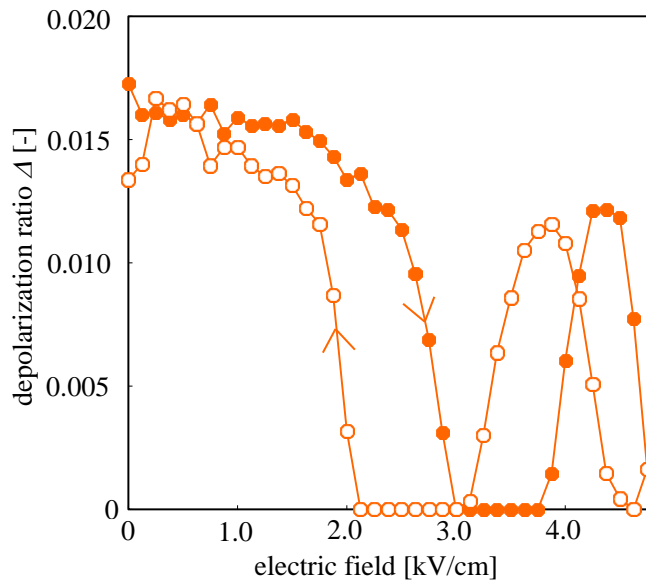


Fig. 3.15 Relationship between the depolarization ratio and the applied electrical field.

次に、偏光解消の変化について議論する。図 3.15 より、偏光解消度は、印加電場が  $0 \text{ kV/cm}$  から  $2.0 \text{ kV/cm}$  の範囲ではおよそ  $1.3\%$  から  $1.7\%$  を示す。そして、方位角が電場方向に急激に変

化し始める 2.0 kV/cm からは、徐々に減少し始め、方位角が電場方向に漸近する 3.0 kV/cm 付近で急激に小さくなった。さらに電場を増大させると、4.0 kV/cm 付近で再び偏光解消度が大きくなった。印加電場の減少過程では、ヒステリシス特性によって値が 1.0 kV/cm ほど低電場側にシフトした形となった。偏光解消がその他の偏光特性の空間的なばらつきによって発生することを考えると、2.0 kV/cm 以下で見られる偏光解消はグレイン・分域構造によるものであると考えられる。印加電場を大きくしていくと、電気光学効果によって、グレイン・分域構造に起因するものより大きな複屈折性が電場方向を進相軸として生じる。そのため、位相差が急激に大きくなって進相軸が電場方向に漸近する 3.0 kV/cm 付近では、グレイン・分域構造によって生じていた偏光解消が相対的に小さくなる。4.0 kV/cm 付近で再び見られる偏光解消は、抗電場である 3.0 kV/cm 以上で起こっていることとセラミックスである PLZT では分極反転が段階的に発生することを考慮すると、分域構造が徐々に変化することで一次の電気光学効果の強さに空間的なばらつきが発生したためと推測することができる。

次に、二色性および円二色性の強さを表すダイアテニュエーションについて議論する。図 3.16 から、ダイアテニュエーションは印加電場が小さいときには 0.6 % 程度で一定であることが分かる。しかし、印加電場が 2.0 kV/cm を超えると増加し始め、最大印加電場である 4.75 kV/cm では 4.4 % となる。しかし、PLZT が吸収異方性を持つという報告はなく、二色性や円二色性を示したとは考えにくい。そこで、以下のように考えた。本測定では、図 3.5 に示すようにミューラー行列偏光計を透過型で構築しているため、透過光強度の変化からミューラー行列を算出して偏光特性を取得している。したがって、サンプル表面でのフレネル反射や散乱によって特定の偏光の透過光強度が減少した場合にもダイアテニュエーションが現れる。ダイアテニュエーションの増加が複屈折位相差の急激に増加する 3.0 kV/cm 以上で起こっていることから、電気光学効果によって屈折率の異方性が大きくなったために見かけ上ダイアテニュエーションが現れたと考えられる。

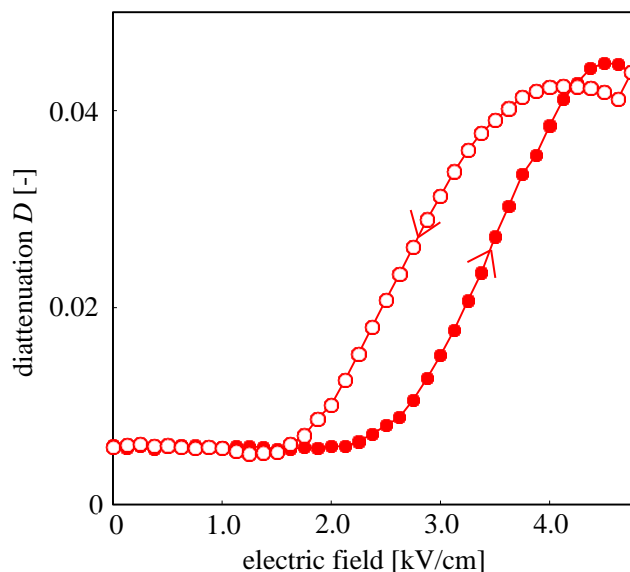


Fig. 3.16 Hysteresis curve of PLZT-8.9/65/35 for the diattenuation  $D$ .

最後に、旋光性について議論する。図 3.17 より、旋光角は $-0.2^\circ$ から印加電場の増加にともなって $1.1^\circ$ まで変化した。しかし、PLZT はペロブスカイト型の結晶構造をしているため対掌性を持たず、結晶構造のみに着目すれば旋光性を示すとは考えにくい。一方で、複屈折性を示す液晶分子を光軸に沿って螺旋状に配置することで旋光を生じさせるツイステッドネマティック液晶というものが知られている[12]。そのようなことを勘案すると、PLZT の厚さ方向の複屈折性のばらつきが旋光性として測定された可能性がある。

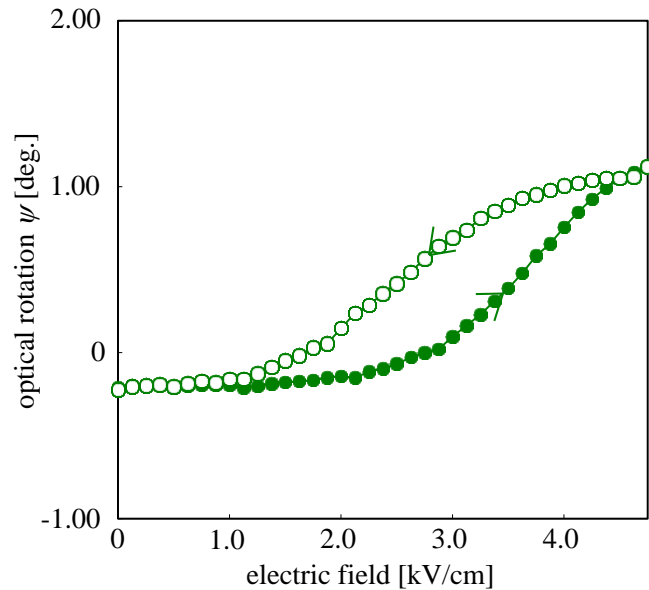


Fig. 3.17 Hysteresis curve of PLZT-8.9/65/35 for the optical rotation  $\psi$ .

### 3.4.2 複屈折性のメモリ効果

前節の図 3.14 の複屈折性の測定結果から、分域構造の変化によって電場印加後に電場を零としたときに、方位角の値が初期値から変化することが明らかになった。近年、分極反転によって自発分極の大きさが変化することを利用した不揮発性のメモリデバイスが提案されているが[13]、この方位角の変化を複屈折性におけるメモリ効果と捉えられるかもしれない。したがって、その詳細な測定を行った。さらに、そのような複屈折性メモリ効果のデバイス応用をめざして、光メモリスイッチを試作した結果を述べる。

まずは、メモリ効果によって変化した方位角を逆方向の電場を印加することによって元の値に戻ることができるかどうかを確認した。図 3.18 に、一度電場を  $4.5 \text{ kV/cm}$  まで印加した後、電場の印加方向を反転させて再び  $4.5 \text{ kV/cm}$  まで印加したときの複屈折性の変化を示す。このとき、電場の印加方向は偏光計の基準軸に対して  $90^\circ$  とした。図 3.18 より、方位角は、一度目の電場印加によって  $30.8^\circ$  から  $35.5^\circ$  に変化した後、逆方向に電場を印加すると再び元の値の  $30.8^\circ$  まで戻った。よって、印加電場の正負によって方位角の変化する向きを変化させられることが確認できた。



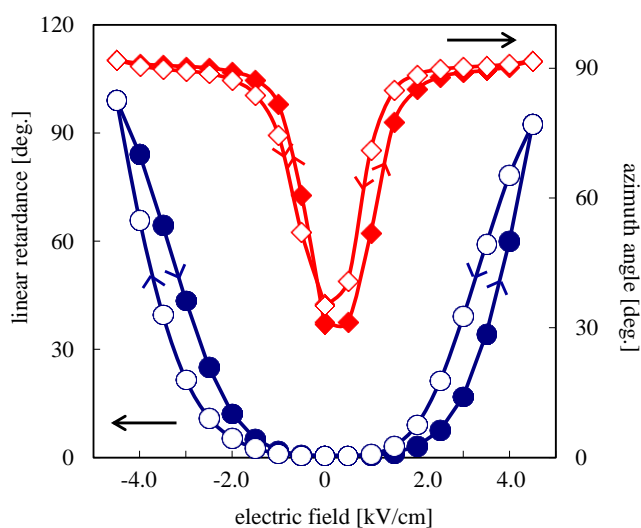


Fig. 3.18 Butterfly curve of birefringence of PLZT.

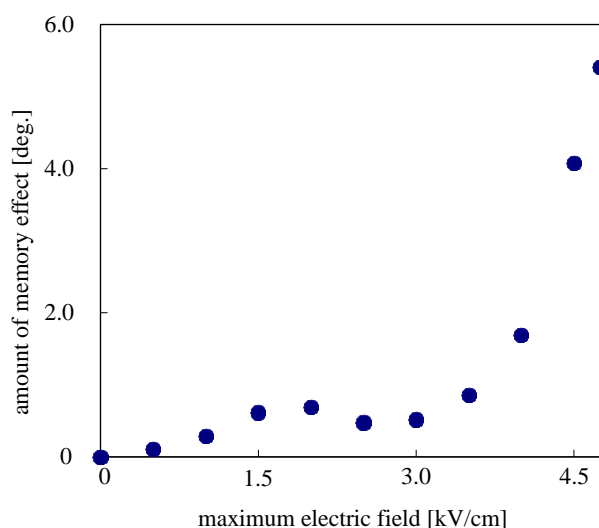


Fig. 3.19 Amount of the memory effect as a function of the maximum electrical field.

電場印加前後における方位角の変化量を，一度の操作で与えることができる変化量と考えてメモリ量と呼ぶ．メモリ量は，電場の印加による分域構造の変化量にあたるため，分極反転が徐々に起こる強誘電性セラミックスでは印加電場の強度によって決まると推測できる．また，印加電場が抗電場よりも小さいときには分極反転が生じないため，メモリ効果は発生しないと考えられる．そこで，最大印加電場に対するメモリ量の変化を測定した．図 3.19 に，0 kV/cm から 4.75 kV/cm までで最大印加電場を変えたときのメモリ量の変化を示す．図 3.19 より，最大印加電場を抗電場である 3.0kV/cm から 4.75 kV/cm まで大きくしたとき，メモリ量は 0.5°から 5.4°まで増大することが分かる．しかし，抗電場以下でも 1°以下ではあるが，メモリ効果が観測された．このことは，抗電場以下でも分域構造にわずかながら変化があったことを示す．これは，単結晶材料が分極処

理後に新たな分域を生じるように、内部応力的に不安定な部分では電場を取り除いた後により安定な状態に自発分極が変化するために分域構造にわずかな変化が生じたためと考えられる。図 3.19 より、最大印加電場によってメモリ量を制御できることが分かった。

以上のことから、印加電場強度によって任意のステップ角で複屈折性の進相軸を回転させることができると考えられる。そこで、最大印加電場を一定として同じ方向に繰り返し電場を印加したとき、任意のステップ角で進相軸を回転させられるかどうかを確認した。図 3.20 に、最大印加電場を 3.0 kV/cm から 4.5 kV/cm まで 0.5 kV/cm 間隔で変化させながら、それぞれの印加電場において 5 回ずつ繰り返し印加したときの方位角の変化をプロットした結果を示す。これより、最大印加電場によって任意のステップ角で単調に進相軸を回転させられることを確認した。

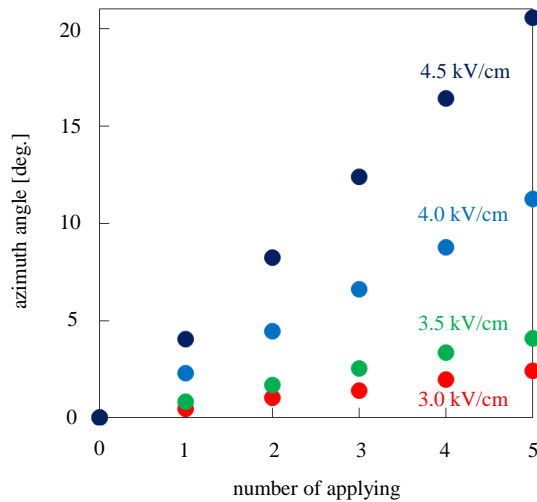


Fig. 3.20 Rotation of the orientation angle of the fast axis of the birefringence of PLZT as a function of the number of the application of the voltage with a parameter of its maximum electric field.

### 3.5 結言

本章では、強誘電体の全偏光特性を同時かつ個別に評価することを目的とし、2重回転位相子型偏光計を構築して強誘電体のミュラー行列を測定および再構成することで、強誘電体の全偏光特性を定量的に取得することを可能にした。このように、強誘電体の偏光解消を含む全偏光特性を測定した例はほかにはない。

確認実験として、代表的な透光性の強誘電性セラミックスである PLZT-8.9/65/35 のバルク体の測定を行った。電気光学デバイスとしての応用を想定し、PLZT に電場を印加したときの各偏光特性の変化を測定することで評価を行った。強誘電体はその結晶構造から偏光特性の中でも特に複屈折性を示し、また、電気光学効果によって印加電場の一乗もしくは二乗に比例した複屈折性を

生じさせる。そこで、印加電場に対する複屈折性の変化を糸口として強誘電体のグレイン・分域構造と各偏光特性の関係について考察した。

加えて、複屈折性において、分域構造の変化によって電場を印加していないときの進相軸方位が変化することに着目した。これを複屈折性におけるメモリ効果と捉え、これについてより詳細に報告した。進相軸の回転角は印加電場が抗電場を超えたところから大きくなり、印加電場強度を一定としてやれば任意のステップ角で進相軸を回転させられることを確認した。

## 参考文献

- [1] G. H. Haertling and C. E. Land, " Hot-pressed (Pb,La)(Zr,Ti)O<sub>3</sub> ferroelectric ceramics for electro-optic applications", *J. Am. Ceram. Soc.*, **54**, (1971), 1-11.
- [2] S. Nomura, H. Arima and F. Kojima, "Quadratic Electro-Optic Effect in the System Pb(Zn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **12**, (1973), 531-535.
- [3] 新妻 弘明, 大和田 淳一, 佐藤 利三郎, 「電気光学効果を用いた強誘電体セラミックスの分極分布測定」 *電気学会論文誌 A*, **98**, (1977), 151-158.
- [4] K. Carl and K. Geisen, " Dielectric and optical properties of a quasi-ferroelectric PLZT ceramic" *Proc. IEEE*, **61**, (1973), 397-404.
- [5] Ki-Young Oh, Kenji Uchino and L. E. Cross, " Optical study of Domains in Antiferroelectric Ceramics " *Adv. Perform. Mater.*, **4**, (1997), 135-145.
- [6] Q. Liu, N. Fleck, J. Huber and D. Chu, " Birefringence measurements of creep near an electrode tip in transparent PLZT", *J. Eur. Ceram. Soc.*, **29**, (2009), 2289-2296.
- [7] D. Goldstein, "Polarized light", Marcel Dekker, (2003).
- [8] R. M. A. Azzam "Photopolarimetric measurement of the mueller matrix by fourier analysis of a single detected signal", *Opt. Lett.* **2**, (1978), pp. 148-150.
- [9] D. H. Goldstein, " Mueller matrix dual-rotating retarder polarimeter", *Appl. Opt.*, **31**, (1992), 6676-6683.
- [10] D. H. Goldstein and R. A. Chipman, " Error analysis of a mueller matrix polarimeter", *J. Opt. Soc. Am. A*, **7**, (1990), 693-700.
- [11] C. B. Sawyer and C. H. Tower, "Rochelle Salt as a Dielectric", *Phys. Rev.*, **35**, (1930), 269-273.
- [12] G.W. Gray, K. J. Harrison and J. A. Nash, "New family of nematic liquid crystals for displays", *Electronics Lett.*, **9**, (1973), 130-131
- [13] J. F. Scott and C. A. Araujo, "Ferroelectric memories", *Science*, **246**, (1989), 1400-1405.

## 4章 ミュラー偏光行列顕微鏡による強誘電体の分域構造の観察

### 4.1 緒言

ミュラー偏光行列を介して、強誘電体結晶の分極の電場依存性から例えば複屈折の電場依存性に関する情報が取得できることを前章で示した。このような偏光解析法の利点の一つとして、結像光学系にその手法を導入し、CCDやCMOSカメラなどの二次元検出器を用いて、対象物質の二次元分布計測が高精度で行えるという点が挙げられる。そこで本章では、ミュラー行列を用いた偏光測定光学系を透過型顕微鏡に導入し、強誘電体のマイクロな分域構造の電場依存性を観察することを初めて提案する。

電場によって分極反転制御が可能な強誘電体は、セラミックコンデンサや圧電素子、不揮発性メモリなどの様々な電子デバイスに用いられており、その需要は世界的に拡大している[1]。特に近年では、デバイスの小型化や高性能化のために、その素子としての特性の微細な制御が必要となっている。強誘電体の特性を決定付けるに当たって最も重要な要素の一つが分極反転である。巨視的な分極反転は、通常、結晶粒内に存在する数nmから数 $\mu\text{m}$ の自発分極の揃った領域であるドメイン(分域)構造の変化として捉えることができる。しかし、近年開発されつつある強誘電体ナノ粒子や強誘電体薄膜の分域構造についてなどは、未だ厳密な理解が得られていない。したがって、より高度な強誘電体材料やそれを用いたデバイスの開発を推進するためには、そのような分域構造を直接観察する手法の開発が必要不可欠である。

これまでに一般的に用いられている分域構造の観察法としては、エッチング法[2]や圧電応答顕微鏡(PFM; piezoresponse force microscopy)[3]、走査型非線型誘電率顕微鏡(SNDM; scanning Nonlinear Dielectric Microscopy)[4]などが知られている。それらのうち最も簡単なエッチング法は、腐食液による腐食速度が分域によって異なる事実を利用して、腐食によって生じる試料表面の凹凸から分域構造を可視化させる手法である。圧電応答顕微鏡と走査型非線型誘電率顕微鏡は、走査型プローブ顕微鏡の探針と試料の間に交流電場を印加して、試料の圧電効果による振動や静電容量の変化をそれぞれ探針で読み取ることで分域構造を可視化する。エッチング法はもちろん破壊的な観察手法であるが、圧電応答顕微鏡や走査型非線型誘電率顕微鏡も観察するために専用の加工を施した試料を用意する必要がある。そのため、作製したデバイスの分域構造を直接観察することや、ましてや動作中のデバイスの分極の変化をそのまま観察することは非常に難しい。

これに対して本章で提案する偏光解析法を用いた分域構造の観察法では、透過光の偏光状態を解析するため、透光性のある材料に限定されるが、非破壊で駆動中のデバイスの分域構造の直接観察が可能となる。しかし、圧電応答顕微鏡や走査型非線型誘電率顕微鏡の空間分解が10nm程度であるのに対し、ここでの提案手法は光の回折限界によって波長程度に制限される。一方、装置の価格は十分の一以下で抑えることができるため、より簡便な観察法として期待できる。全偏光特性を表現するミュラー行列の算出に固執しなければリアルタイム測定も期待できる。

### 4.2 二重回転位相子型偏光顕微鏡

3章で用いた二重回転位相子型偏光計を顕微鏡下で構成し、光検出器としてCMOSカメラを用いることで、試料のミュラー行列の空間分布の測定が可能となる。

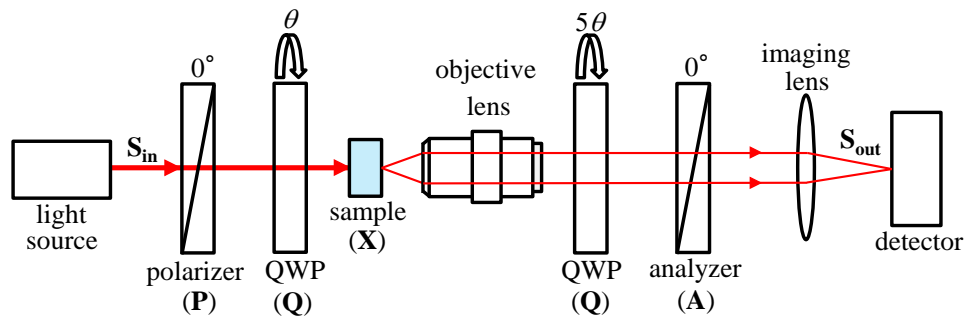


Fig. 4.1 Optical system of a two-dimensional Mueller-matrices polarimeter.

図 4.1 に、ミュラー行列の二次元空間分布の測定が行える二重回転位相子型偏光顕微鏡の光学系を示す。試料部(X)とそれより後方の 1/4 波長板(QWP)の間に対物レンズを、2次元検出器の前に結像レンズを組み込む。物体光を対物レンズによって平行光にし、結像レンズによって2次元検出器の素子面に結像させる無限遠補正光学系を用いる。無限遠補正光学系を用いることで、対物レンズと結像レンズの間は平行光であるためレンズ間の距離を任意に設定できる。また、対物レンズと結像レンズの間に偏光光学素子を組み込んでも、光線は屈折せず、偏光光学素子はその本来の機能を保つ。さらに、試料の物体光が2次元検出器の素子面に結像するため、2次元検出器の各画素が独立した光検出器の役割を果たし、2次元検出器の画素の解像度で試料のミュラー行列の空間分布を取得することができる。したがって、各画素毎に3.2.1節および3.2.2節で述べた「測定」と「キャリブレーション」を実行すればよい。

### 4.3 装置構成および評価

本節では、実際に作製した二重回転位相子型偏光顕微鏡の構成と測定手順を4.3.1節で述べ、その測定精度の評価結果を4.2.2節で述べる。

#### 4.3.1 装置の構成と測定手順

図 4.2 に二重回転位相子型偏光顕微鏡のブロック図を、図 4.3 にその光学系の写真を示す。また、表 4.1 に、構成部品のメーカー、品番および基本性能をまとめて示す。

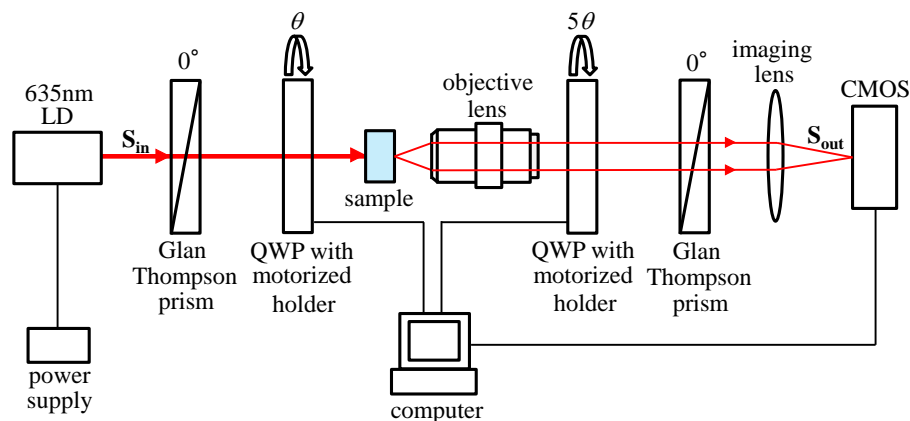


Fig. 4.2 Schematic of the two-dimensional Muller-matrix polarimeter.

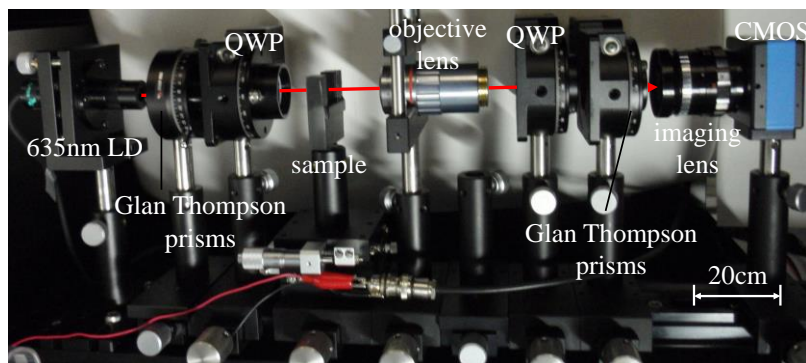


Fig. 4.3 Photograph of the two-dimensional Mueller-matrix polarimeter.

Table 4.1 Composition components of the two-dimensional Mueller-matrix polarimeter.

component	vender	model	specific
laser diode	NEOARK Co.	LDP2-6705B	wavelength: 635nm power: 35mW
laser diode power supply	NEOARK Co.	DPS-2002	output current: 0~200mA
CMOS camera	The Imaging Source Europe GmbH	DMK 21AUC03	Res: 640×480 sensitivity: 4.5V/lux-sec 256 shades of gray
objective lens	Mitutoyo Co.	M Plan Apo 50×	working distance: 5.2mm
imaging lens	PENTAX Co.	COSMICAR TELEVISION LENS	focus length: 25mm
1/4 wave plate	Sigma Koki Co.,Ltd.	WPQ-6328-4M	wavelength range: 632.8nm
Glan Thompson prisms	Sigma Koki Co.,Ltd.	GTPC-10-25SN	wavelength range: 320nm~2.3μm
motorized holder	Sigma Koki Co.,Ltd.	SGSP-60-YAW-OB	step angle: 0.0025°

装置の構成および測定手順は 3.3.1 節で述べたミュラー行列偏光計とほぼ同じである。異なる点は、試料を透過した光が倍率 5 倍または 10 倍の無限遠補正対物レンズによって平行光となり、検光子透過後に結像レンズによって CMOS カメラの受像素子上に結像する点である。CMOS カメラの画像は直接コンピュータに取り込む。画像の取得、ステッピングモータの回転制御、光学系の較正、ミュラー行列の算出と再構成なども前と同様に LabVIEW 上で処理する。

### 4.3.2 測定精度の評価

作製した偏光顕微鏡の測定精度を評価するため、偏光特性が既知である 1/4 波長板(QWP)の偏光特性を測定した。1/4 波長板を 45°ずつ 0°から 180°まで回転させてミューラー行列の空間分布を測定し、その複屈折の空間分布を算出した。図 4.4 に装置の基準軸に対して 1/4 波長板の回転角が 0°での、図 4.5 に 45°での、図 4.6 に 90°での、図 4.7 に 135°での、図 4.8 に 180°での複屈折性の空間分布図を示す。ここで、ベクトルの向きが方位角 $\varphi$ を、色が複屈折位相差 $\delta$ の大きさを示す。測定値の標準偏差は、複屈折位相差で $\pm 2.7^\circ$ 、方位角で $\pm 3.4^\circ$ であった。従来法である PFM や偏光顕微鏡が分域ごとのコントラストを付けて観察することを目的とすることを考慮すると、十分な測定精度である。

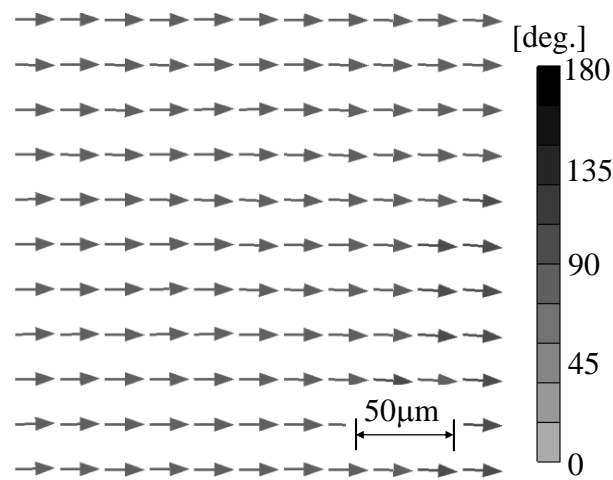


Fig. 4.4 Spatial distribution of birefringence of QWP when the rotation angle is 0°.

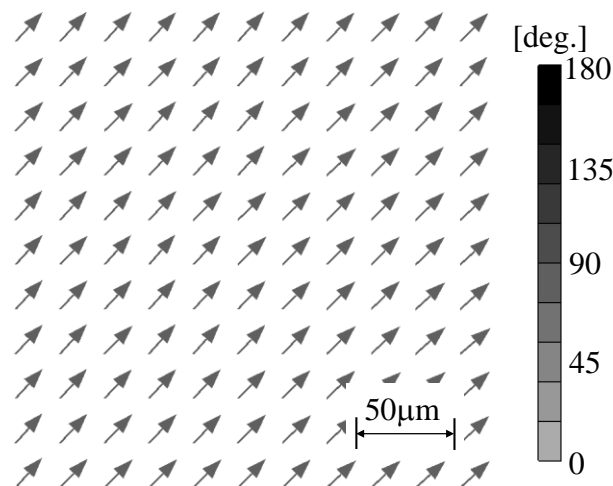


Fig. 4.5 Spatial distribution of birefringence of QWP when the rotation angle is 45°.



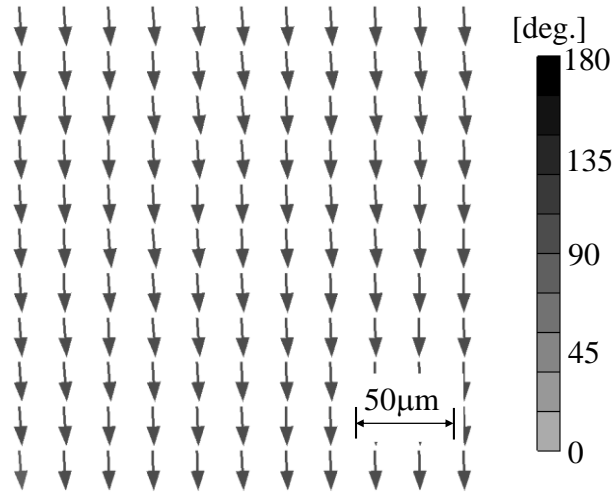


Fig. 4.6 Spatial distribution of birefringence of QWP when the rotation angle is  $90^\circ$ .

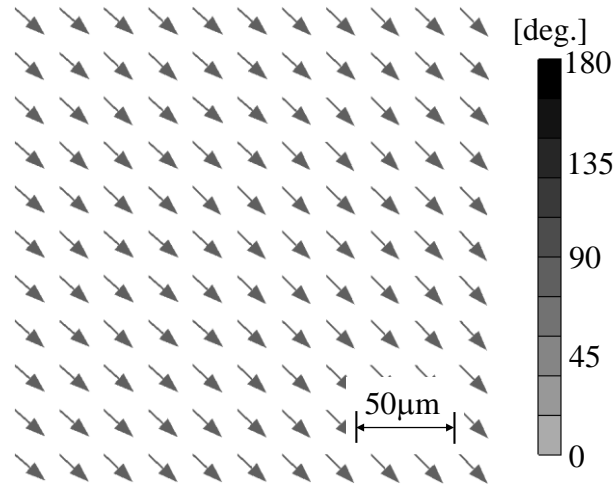


Fig. 4.7 Spatial distribution of birefringence of QWP when the rotation angle is  $135^\circ$ .

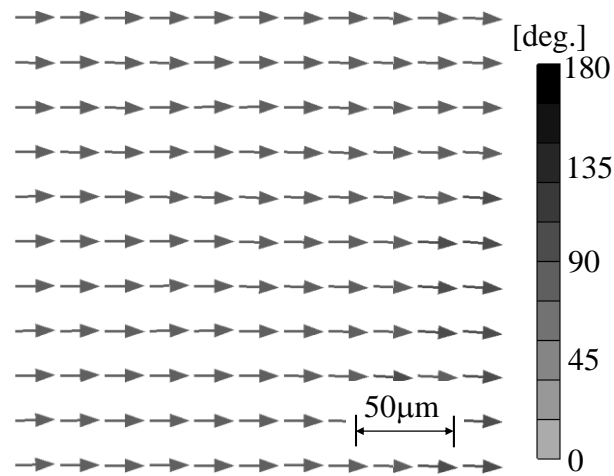


Fig. 4.8 Spatial distribution of birefringence of QWP when the rotation angle is  $180^\circ$ .

#### 4.4 測定結果および考察

二重回転位相子型偏光顕微鏡を用い、3章で測定したチタン酸ジルコン酸ランタン鉛(PLZT: Lead Lanthanum Zirconate Titanate)に電場を印加したときの全偏光特性の空間分布の変化を測定した結果について述べる。PLZTの詳細については3.4.1節で詳述した。このPLZTの中央 $18\ \mu\text{m}$ 平方の空間領域を、印加電場を $0\ \text{kV/cm}$ から $4.75\ \text{kV/cm}$ まで変化させながら観察した。

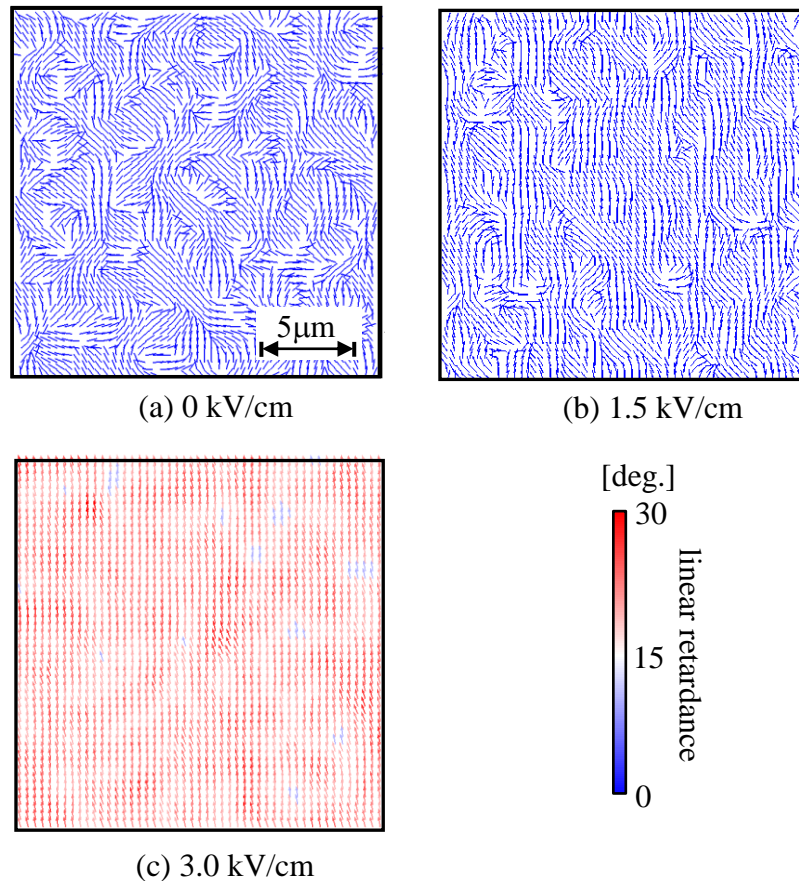


Fig. 4.9 Spatial distribution of birefringence of PLZT at the applied electric-field of (a)  $0\ \text{kV/cm}$ , (b)  $1.5\ \text{kV/cm}$ , and (c)  $4.75\ \text{kV/cm}$ .

図4.9はそうにして測定した複屈折性の分布である。電場の方向は図の下から上方向であり、分布図のベクトルの向きと色がそれぞれ進相軸の方位と複屈折位相差を表している。図4.9(a)より、電場を印加していないときには複屈折性は同じ方位を示す直径 $1\sim 5\ \mu\text{m}$ 程度の領域に分かれていることがわかる。領域の直径がPLZTの粒径に近いことから、この領域はグレイン構造を反映したものであると考えられる。印加電場が(b)から(c)と大きくなっていくと徐々に方位が電場方向に揃っていき、(c)の $3.0\ \text{kV/cm}$ ではほとんどの方位が電場方向に揃った。また、位相差についても(b)の $1.5\ \text{kV/cm}$ から(c)の $3.0\ \text{kV/cm}$ に印加電場が増加したときに大きく増加しており、電気

光学効果によってグレイン構造による方位のばらつきが抑制できることを確認した。さらに、印加電場が 3.0 kV/cm のとき、面内で位相差にばらつきがあることを確認できた。そこで、偏光解消については、グレイン・分域構造が関係していると思われる低電場側では方位角との関係を調べ、電気光学効果が関係していると思われる高電場側では位相差との関係を調べることにし、それぞれの画像の比較を行った。

図 4.10 に、方位角と偏光解消度の分布図をそれぞれ示す。図 4.10(a)より、個々の領域で透過光の偏光状態が異なるため、方位が大きく変化する領域の界面で偏光解消が高くなり、方位角の分布に対応した波状の分布を持つ様子が観察できる。(b)より、印加電場が大きくなると方位角が電場方向に揃って一様になるのにもなって偏光解消度が減少して波状の分布が薄くなることが確認できる。しかし、印加電場が 0 kV/cm から 3.0 kV/cm に上昇することで偏光解消が大きくなる点が数点存在する。これらは、図 4.9(c)で見られた位相差のばらつきによるものと考えられる。

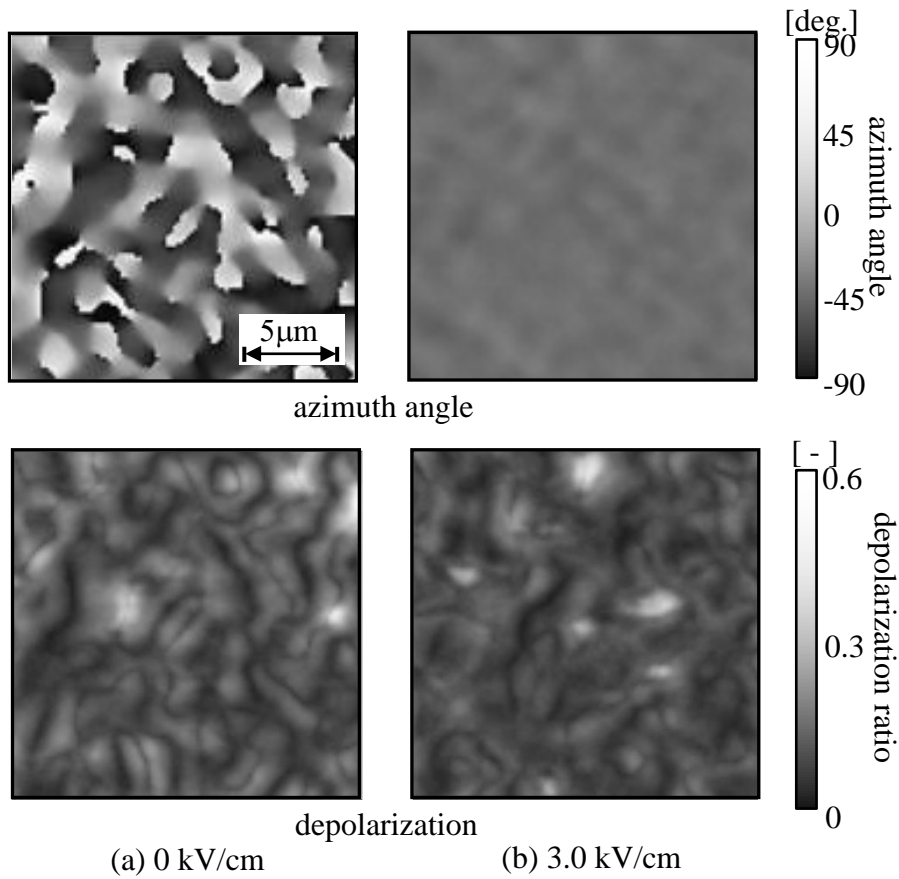


Fig. 4.10 Spatial distributions of the azimuth-angle (upper) and the depolarization (lower) of PLZT at (a) 0 kV/cm and those at (b)3.0 kV/cm.

そこで、複屈折位相差と偏光解消の分布を比較した。図 4.11 に、複屈折位相差と偏光解消度の空間分布をそれぞれ示す。位相差の分布図については分布のばらつきを見やすくするために分布図中の最大値を  $\delta_{\max}$ 、最小値を  $\delta_{\min}$  として規格化している。矢印で示した周囲に比べて位相差の落

差が大きい点で偏光解消度が大きくなっていることが分かる。これらの点は分極反転の生じるタイミングが周囲と異なったために、一次の電気光学効果によって生じる位相差に差が生じたと考えられる。3章の図3.15から、この位相差のばらつきは4.5 kV/cm付近で大きくなるはずである。そこで、図4.12に、分布図の各画素における位相差 $\delta$ と各印加電場での位相差の平均値 $\delta_{ave}$ の差分をヒストグラムで示す。図4.12より、0 kV/cmに比べて4.5 kV/cmの方がヒストグラムの裾野が広く、位相差のばらつきが大きくなっていることが確認できる。以上のことから偏光解消について、低電場側ではグレイン・分域構造による方位角のばらつきが、高電場側では電気光学効果による位相差のばらつきがそれぞれ関係していることが確認できた。

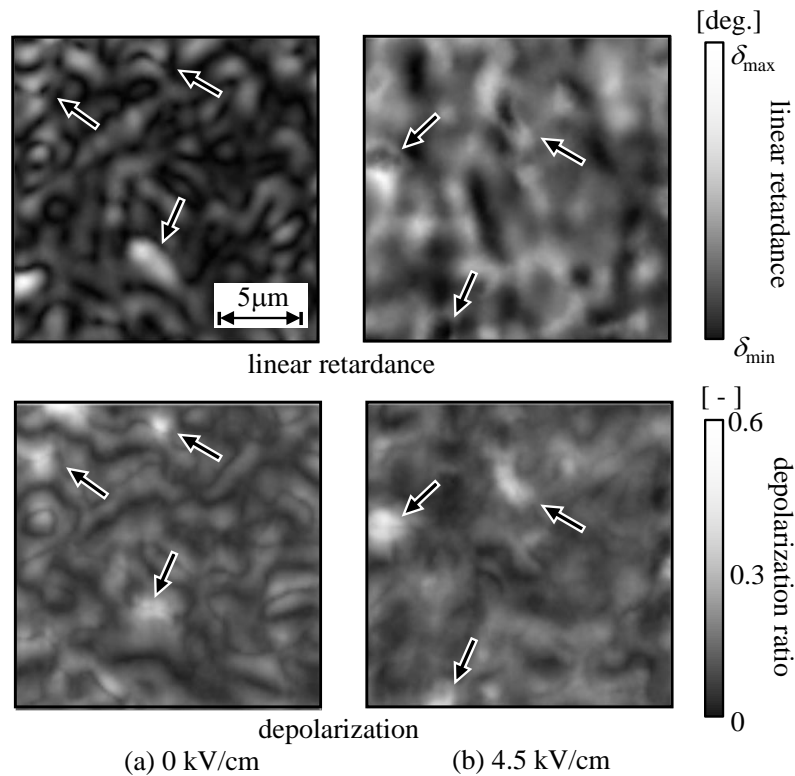


Fig. 4.11 Spatial distributions of the linear retardance (upper) and the depolarization (lower) of PLZT at (a) 0 kV/cm and those at (b) 4.5 kV/cm.

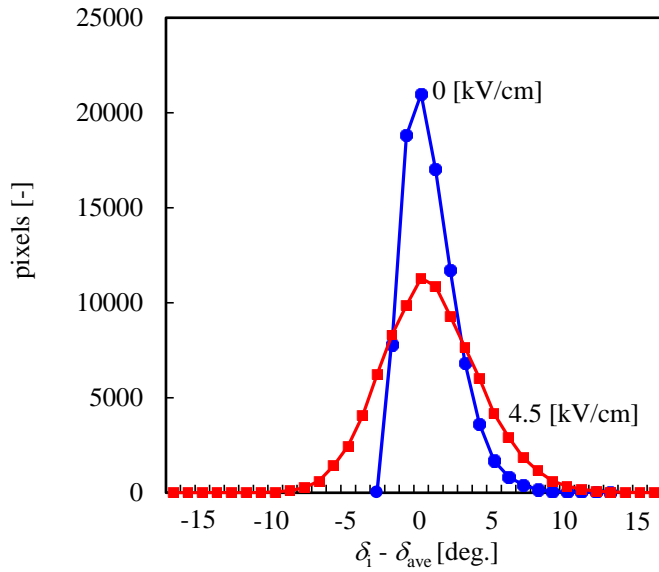


Fig. 4.12 Histogram that shows the pixel distribution of the degree of the linear retardance at 0 kV/cm (blue) and that at 4.5 kV/cm (red).

次に、ダイアテニュエーションと複屈折性の関係について確認した。図 4.13 に、0 kV/cm のときの複屈折位相差とダイアテニュエーションの分布をそれぞれ示す。これより、位相差の大きいところでダイアテニュエーションも大きくなるのが分かる。したがって、複屈折位相差によるサンプル表面でのフレネル反射によって見かけ上のダイアテニュエーションが生じることが分かる。

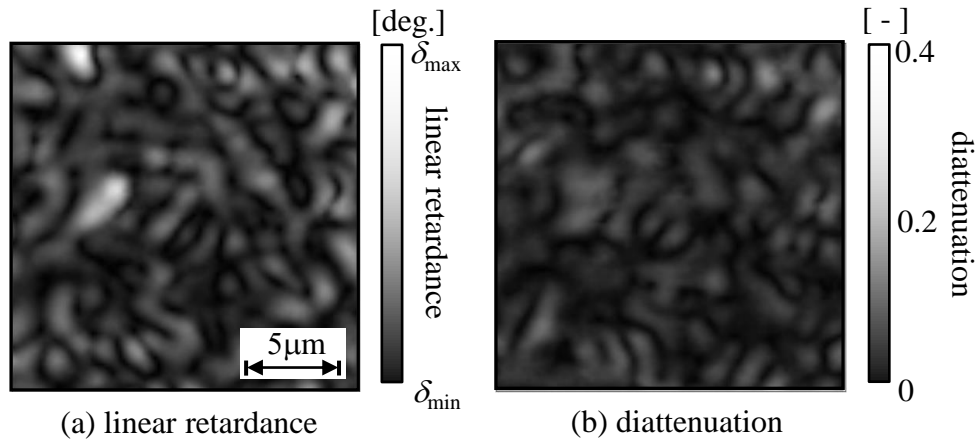


Fig. 4.12 Spatial distributions of (a) the linear retardance and (b) the diattenuation of PLZT at 0 kV/cm and those at (b)4.5 kV/cm.

## 4.5 結言

ここでは、透過型顕微鏡にミュラー偏光行列法を導入したが、反射型顕微鏡でも原理的には全く同じ手法と議論が行える。反射型顕微鏡を導入すれば、不透明試料の表面近傍の分極の挙動が調べられる。これは今後の有望な課題の一つであろう。しかし、反射型顕微鏡で表面近傍の分極の挙動を調べる場合には、測定光と相互作用する面積が小さくなるため、より微小な偏光状態の変化をより高感度で捉える必要がある。そこで、第5章では、偏光計測の高感度化の課題に対して、偏光変調素子の改良やロックインアンプによるS/N比の向上といった従来手法とは異なるアプローチの一つとして、「偏光に関する幾何学的位相(GP; geometric phase)の非線形挙動」を利用した高感度な偏光測定手法を提案する。

## 参考文献

- [1] Kenji Uchino, "Ferroelectric Devices", Marcel Dekker, (2000)
- [2] N. Nassau, H. J. Levinstein and G. M. Loiacono, "THE DOMAIN STRUCTURE AND ETCHING OF FERROELECTRIC LITHIUM NIOBATE", Appl.Phys. Lett., **6**, (1965), 228.
- [3] Y. Cho, A. Kirihara, and T. Saeki, "Scanning nonlinear dielectric microscope", Rev. Sci. Instrum., **67**, (1996), 2297-2303.
- [4] K. Takata, K. Kushida, K. Torii and H. Miki, "Strain Imaging of Lead-ZirconateTitanate Thin Film by Tunneling Acoustic Microscopy ", Jpn. J. Appl. Phys., **33**, (2004), 1281.

## 5 章 幾何学的位相の非線形挙動を用いた偏光計測手法の高感度化

### 5.1 緒言

4 章までで、ミューラー行列による高精度な偏光計測手法を導入することによって、従来の偏光顕微鏡では観察が困難な強誘電体のマイクロな分域構造の可視化が可能となることを確認した。しかし、例えば反射型顕微鏡で表面近傍の分極の挙動を調べる場合には、測定光と相互作用する面積が小さくなるため、より微小な偏光状態の変化をより高感度で捉える必要がある。本章では、このような偏光計測の高感度化の課題に対して、偏光変調素子の改良やロックインアンプによる S/N 比の向上といった従来手法とは異なるアプローチの一つとして、「偏光に関する幾何学的位相 (GP; geometric phase) の非線形挙動」を利用した高感度な偏光測定手法を提案する。ここでは、強誘電体の評価手法への応用を検討する前段階と位置付けて、偏光特性の中の旋光性に対象を絞ることとした。そのための装置と手法を提案し、原理検証を行った結果を示す。

幾何学的位相  $\gamma$  は、2 光波の偏光干渉において 1956 年に Pancharatnam によって初めて指摘された[1,2]。要約すると、「規格化されたポアンカレ球面上で与えられる 2 点の偏光状態の光を干渉させた時、得られる干渉縞の位相は、その 2 つの偏光状態の点と干渉検出のための検光子が与える偏光状態の点の、計 3 点で決まる球面三角形が原点に対して張る立体角  $\Omega$  の  $-1/2$  倍に等しくなる ( $\gamma = -\Omega/2$ )」ということである。 $\Omega$  の符号はその三角形を反時計方向に回るときを正と定義する。その後、1984 年に Berry によって、より普遍的な物理的概念として再発見され、幾何学的 (量子) 位相と名づけられた[3]。それ以降、その解釈の仕方、GP 測定における非線形な挙動、測定方法などについて多くの報告がなされている[4-14]。

本研究では、測定感度の向上に加えて、GP に波長依存性の情報を付加することを試みた。そのために、「サバル板を用いた複屈折偏光干渉計に基づくマルチチャンネルフーリエ分光器」(MC-FTS; Fourier-transform spectrometer)[15]を用い、GP の波長依存性測定、すなわち旋光分散測定を行うことを初めて提案する。この手法の装置的な新規性は、GP の非線形挙動に関する情報を得るために、MC-FTS 内に零次の  $1/4$  波長板(QWP; quarter-wave plate)を新たに追加・挿入したことである。最終的にその QWP の進相軸の方位  $\phi$  の設定によっては、試料の旋光分散(ORD)測定が高感度に行える可能性があることを示す。これは光学的な「弱測定」の概念に通じている。

### 5.2 原理

本章では、5.2.1 節でサバル板を用いた複屈折偏光干渉に基づく MC-FTS の概要を説明する。5.2.2 節では、提案する零次の QWP を追加した「変形マルチチャンネルフーリエ分光器」(modified MC-FTS)で測定される GP の非線形挙動についての定性的な説明をポアンカレ球を用いて行なう。5.2.3 節では、同様の説明を Jones 偏光行列を用いて定量的に行う。5.2.4 節では、その変形 MC-FTS で取得した位相スペクトルから試料の旋光角  $\alpha$  の波長依存性、すなわち ORD を推定するための具体的な手続きについて説明する。

#### 5.2.1 変形マルチチャンネルフーリエ分光器(modified MC-FTS)

図 5.1 に提案する零次の QWP を追加した変形マルチチャンネルフーリエ分光器(modified MC-FTS)の光学系の概要と各素子出射後の偏光状態を示す。分光測定が目的の従来の MC-FTS に



おいては、図中の QWP は挿入されていない。その場合には、白色 LED (LXHL-NW98, Luxeon) からの光束は、方位 45 度の偏光子 P (SPF-30C-32, シグマ光機) を通過後、サバル板 SP (CSP-15-8-M, CaCO<sub>3</sub> 製, 設計波長 633 nm での空間分離距離;  $d=0.61$  mm, Leysop) によって、水平偏光と垂直偏光に分離される。その後、それぞれの偏光成分は試料を通過し、方位  $\theta = 45$  度の検光子 A (SPF-30C-32, シグマ光機) を経て、フーリエ変換レンズ L (LB1945-A, 焦点距離;  $f=200$ mm, Tholab) によって、フォトダイオードアレー (PDA, S3904-1024Q, the number of elements; 1024, Hamamatsu Photonics) 上に空間的な干渉縞 (インタフェログラム) を生成する。このインタフェログラムをフーリエ変換することによって検出器に入射した光の振幅スペクトルと位相スペクトルを得る。PDA 面に沿った座標  $x$  における 2 つの光束の光路差  $\Delta$  は、 $\Delta=dx/f$  で与えられる。スペクトル分解能は、原理的には PDA の物理的なサイズと素子数で決まる。

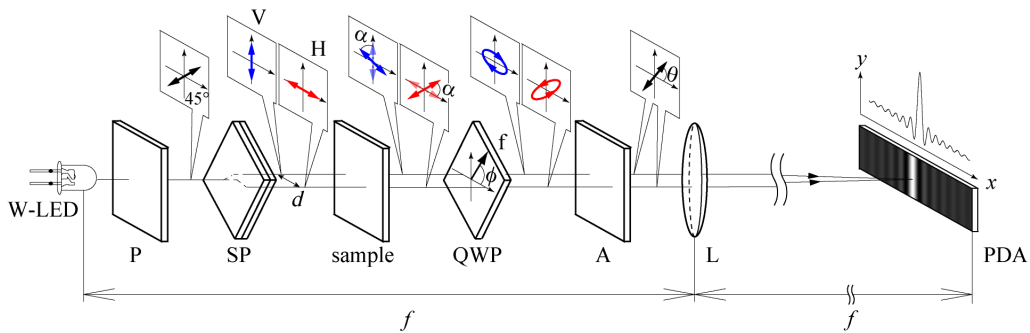


Fig. 5.1. Optical setup of modified MC-FTS based on Savart plate (SP) birefringent interference, in which a zeroth-order quarter-wave plate (QWP) is inserted. W-LED: white LED; P: linear polarizer; A: linear analyzer; L: Fourier transform lens; PDA: photodiode array;  $\phi$ : orientation angle of the fast axis ( $f$ ) of the QWP;  $\theta$ : orientation angle of P;  $\alpha$ : optical rotation angle of the sample. All angles are defined with respect to the horizontal axis ( $x$ ) and their signs are positive for counterclockwise rotation in the  $x$ - $y$  coordinate system, as shown in the figure.

一般に MC-FTS は、通常の単一検出器タイプの分散型分光器と比較してスリットがないため、原理的に大きな「optical throughput」を有する。さらに、通常の単一検出器を使用するフーリエ分光器では、「マルチプレックスアドバンテージ」が保たれないようなショットノイズが優勢となる可視・紫外光領域の微弱光に対しても、「マルチチャネルアドバンテージ」を有するため SN 比の劣化を招かない。加えて、ここで採用した複屈折干渉計に基づく MC-FTS は「source doubling」光学系であるため、光源の大きさが有限であっても干渉縞の可視度に影響を与えないという利点を有している。したがって、既に提案されている多くの MC-FTS と比較して有望である[16-21]。しかしながら、現実にはスペクトル分解能が PDA の素子数で制限されてしまうという難点や、インタフェログラム測定時のダイナミックレンジの制限など、MC-FTS 共通の問題点もあり、広く実用に供されているとは言い難い。しかし、本論文で提案する「GP スペクトル」測定の目的には、必ずしも高スペクトル分解能測定を目的としないため適している。

## 5.2.2 幾何学的位相 (GP; geometric phase) の非線形挙動

本提案では, GP の非線形挙動と波長依存性の測定のために, 図 5.1 に示したように零次の QWP (設計波長 632.8 nm, シグマ光機) をサバール板の直後に新たに挿入した. 本節では, 最初に, 白色 LED ではなく発振波長  $\lambda = 632.8\text{nm}$  の He-Ne レーザの単色光源を用い, かつ試料が存在しない場合 ( $\alpha = 0$ ) の GP の挙動の説明を, Fig.5.2(a) に示したポアンカレ球を用いて定性的に行う. ここで, QWP の進相軸方位( $f$ )を  $\phi = \pi/4$  に固定する.

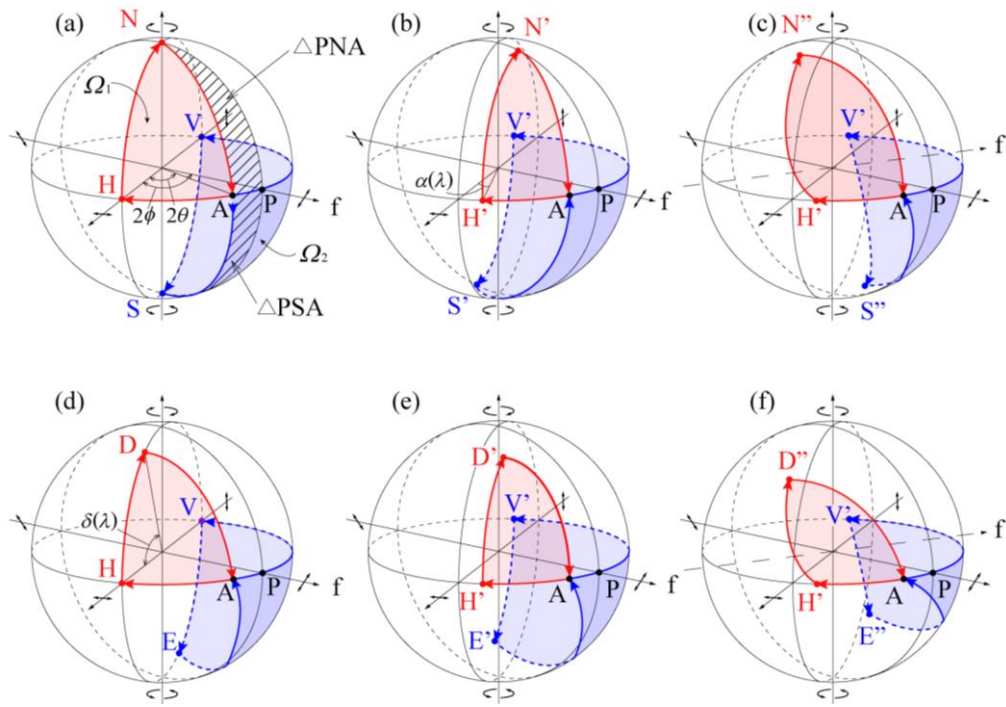


Fig. 2. Poincaré sphere diagrams used to explain the geometric phases,  $\gamma$ , which are obtained from the MC-FTS with the zeroth-order QWP (the fast axis of which is represented by  $f$ ), where  $\alpha$  stands for the rotatory angle provided by the sample,  $\theta$  is the orientation angle of the analyzer,  $\phi$  is the orientation angle of the fast axis of the QWP, and  $\delta(\lambda)$  is the retardation angle introduced by the QWP depending on the wavelength  $\lambda$ ; (a)  $\phi = \pi/4, \alpha = 0, \delta(\lambda) = \pi/2$ , (b)  $\phi = \pi/4, \alpha \neq 0, \delta(\lambda) = \pi/2$ , (c)  $\phi \neq \pi/4, \alpha \neq 0, \delta(\lambda) = \pi/2$ , (d)  $\phi = \pi/4, \alpha = 0, \delta(\lambda) \neq \pi/2$ , (e)  $\phi = \pi/4, \alpha \neq 0, \delta(\lambda) \neq \pi/2$ , and (f)  $\phi \neq \pi/4, \alpha \neq 0, \delta(\lambda) \neq \pi/2$ .

光源からのレーザ光は, 偏光子 P を通過後, サバール板 SP によって水平偏光 H と垂直偏光 V に x 軸方向に分離される. その後, QWP によって図 5.2(a) に示したように, それぞれ右回りと左回りの円偏光 N と S になる. この 2 つの円偏光は方位  $\theta$  の検光子 A を通過することによって, PDA 面上に空間的に広がったインタフェログラムを生成する. ここで, ポアンカレ球面上の入射偏光状態点を P とし,  $P \rightarrow H \rightarrow N \rightarrow A$  の軌跡で囲まれた球面三角形上の面積を  $\Omega_1 (>0)$  とし,  $P \rightarrow N \rightarrow$

A の軌跡で囲まれた面積を  $S_1 (>0)$  とする. また,  $P \rightarrow H \rightarrow N \rightarrow A$  に対応する GP を  $\gamma_1$  とする. したがって,  $\gamma_1 = -\Omega_1/2 = -(\pi/2 - S_1)/2$  である. 一方,  $P \rightarrow V \rightarrow S \rightarrow A$  の軌跡で囲まれた球面三角形の面積を  $\Omega_2 (>0)$  とし,  $P \rightarrow S \rightarrow A$  の面積を  $S_2 (>0)$  とする. したがって,  $\gamma_2 = -\Omega_2/2 = -(\pi/2 + S_2)/2$  である. したがって,  $P \rightarrow H \rightarrow N \rightarrow A \rightarrow S \rightarrow V \rightarrow P$  の軌跡を順に辿って与えられる幾何学的位相  $\gamma$  は,  $P \rightarrow H \rightarrow N \rightarrow A$  の軌跡で与えられる幾何学的位相  $\gamma_1$  と,  $P \rightarrow V \rightarrow S \rightarrow A$  の軌跡で与えられる幾何学的位相  $\gamma_2$  を用いて,  $\gamma = \gamma_1 - \gamma_2$  で与えられる. ここで,  $\gamma_2$  の前についたマイナス符号は軌跡を辿る方向を考慮した結果である. このとき,  $\gamma_1 - \gamma_2 = (S_1 + S_2)/2$  となる. 結局, 観測される  $\gamma$  は図の  $P \rightarrow N \rightarrow A \rightarrow S \rightarrow P$  の軌跡で囲まれる面積に等しくなる. この  $\gamma$  を検光子 A の方位角  $\theta$  の関数としてプロットすると線形に変化する. この事実は, 5.2.3 節において偏光に関するジョーンズ行列の取扱いで定量的に証明できる.

図 5.2(b)は, 試料が存在する ( $\alpha \neq 0$ ) 場合の説明図である. 試料が存在する場合には, サバール板 SP によって分離された水平偏光 H と垂直偏光 V は, それぞれ波長に応じた旋光角  $\alpha (\lambda)$  だけ赤道線上に沿って移動した直線偏光 H' と V' になる. その後, QWP によって右回りと左回りの楕円偏光 N' と S' になる. この 2 つの楕円偏光は方位  $\theta$  の検光子 A を通過することによって, やはり PDA 面上に空間的に広がったインタフェログラムを生成する. 以下, 試料が無い  $\alpha = 0$  の場合と同様の処理を行い,  $\gamma$  を検光子 A の回転角  $\theta$  の関数としてプロットすると, 非線形な挙動を示すことが定性的に理解できる.

図 5.2(c)は, 試料が存在する場合 ( $\alpha \neq 0$ ) に, QWP の進軸方位を  $\psi \neq \pi/4$  としたときの図である. この時, 図 5.2 (b) のように赤道線上に沿って移動した直線偏光 H' と V' は, QWP によって右回りと左回りの楕円偏光 N'' と S'' になり, 方位, 楕円率とも大きく変化する. この 2 つの楕円偏光は方位  $\theta$  の検光子 A を通過することによって, やはり PDA 面上に空間的に広がったインタフェログラムを生成する. このような状態で得られた  $\gamma$  を検光子 A の回転角  $\theta$  の関数としてプロットすると, 顕著な非線形な挙動を示す.

次に光源として白色 LED を使用した場合を考慮する. この場合は波長が QWP の設計波長  $\lambda = 632.8\text{nm}$  からずれる場合も含む. したがって, そのような波長エレメントの一つを考慮すると, QWP で与えられる複屈折位相差  $\delta$  は  $\pi/2$  からずれ, 波長  $\lambda$  の関数  $\delta(\lambda)$  となる. この時, 図 5.2 (a) の場合は図 5.2 (d) のようになる. すなわち, QWP からの出力光の偏光状態は N 点と S 点とはならず, それぞれ  $H \rightarrow N \rightarrow V \rightarrow S \rightarrow H$  の子午線上に沿って H 点, S 点から  $\delta(\lambda)$  だけ回転移動した D, E 点となる. したがって,  $\gamma$  を検光子 A の回転角  $\theta$  の関数としてプロットすると, 非線形な挙動を示すようになる. 図 5.2 (b), 図 5.2 (c) の場合も同様で, それぞれ図 5.2 (e), 図 5.2 (f) のようになる. それぞれ QWP の方位を軸として H 点, S 点から  $\delta(\lambda)$  だけ回転移動した Fig.2(e) の D' 点, E' 点, 図 5.2 (f) では D'' 点, E'' 点となる. いずれも非線形な挙動はさらに強調される.

### 5.2.3 幾何学的位相のジョーンズ行列計算

本節では、2.2 節で定性的に述べた内容を偏光に関するジョーンズ行列を用いて定量的に示す。Fig.2 の P 点の  $\pi/4$  方位の直線偏光を表すジョーンズベクトルは  $\mathbf{P}_{\text{in}} = 1/\sqrt{2} (1,1)^T$  である。方位  $\theta$  の直線偏光子、直線検光子のジョーンズ行列  $\mathbf{P}(\theta)$ 、 $\mathbf{A}(\theta)$  は、いずれも次のようになる。

$$\mathbf{P}(\theta) = \mathbf{A}(\theta) = \begin{pmatrix} \cos^2 \theta & \cos \theta \sin \theta \\ \cos \theta \sin \theta & \sin^2 \theta \end{pmatrix}. \quad (5.1)$$

また、一般に、水平偏光方向 ( $x$  軸) に対する進相軸方位  $\phi$ 、リターデーション  $\delta$  の位相子のジョーンズ行列  $\mathbf{C}(\phi, \delta)$  は、

$$\mathbf{C}(\phi, \delta) = \begin{pmatrix} \cos \frac{\delta}{2} + i \cos 2\phi \sin \frac{\delta}{2} & i \sin 2\phi \sin \frac{\delta}{2} \\ i \sin 2\phi \sin \frac{\delta}{2} & \cos \frac{\delta}{2} - i \cos 2\phi \sin \frac{\delta}{2} \end{pmatrix}. \quad (5.2)$$

である。旋光試料の偏光特性は、旋光角  $\alpha$  を用いて旋光子のジョーンズ行列  $\mathbf{R}(\alpha)$  で次のように表される。

$$\mathbf{R}(\alpha) = \begin{pmatrix} \cos \alpha & -\sin \alpha \\ \sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix}. \quad (5.3)$$

したがって、図 5.2(f) の最も一般的な場合を考え、ポアンカレ球上を  $\mathbf{P} \rightarrow \mathbf{H} \rightarrow \mathbf{H}' \rightarrow \mathbf{D}'' \rightarrow \mathbf{A}$  と移動した時に得られる最終的なジョーンズベクトルは、 $\mathbf{J}_1(\theta, \phi, \delta, \alpha)$ 、次のようになる。

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_1(\theta, \phi, \delta, \alpha) &= \mathbf{A}(\theta) \cdot \mathbf{C}(\phi, \delta) \cdot \mathbf{R}(\alpha) \cdot \mathbf{P}(0) \cdot \mathbf{P}_{\text{in}} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ \cos \frac{\delta}{2} \cos(\theta - \alpha) + i \sin \frac{\delta}{2} \cos(\theta - 2\phi + \alpha) \right\} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (5.4)$$

同様に、 $\mathbf{P} \rightarrow \mathbf{V} \rightarrow \mathbf{V}' \rightarrow \mathbf{E}'' \rightarrow \mathbf{A}$  と移動したとき、 $\mathbf{J}_2(\theta, \phi, \delta, \alpha)$  は、

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_2(\theta, \phi, \delta, \alpha) &= \mathbf{A}(\theta) \cdot \mathbf{C}(\phi, \delta) \cdot \mathbf{R}(\alpha) \cdot \mathbf{P}(\pi/2) \cdot \mathbf{P}_{\text{in}} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ \cos \frac{\delta}{2} \sin(\theta - \alpha) - i \sin \frac{\delta}{2} \cos(\theta - 2\phi + \alpha) \right\} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (5.5)$$

と与えられる。ここで、 $\mathbf{J}_1$  と  $\mathbf{J}_2$  は、いずれも方位  $\theta$  の直線偏光を表わすジョーンズベクトルである。このとき、それらのジョーンズベクトル全体にかかる複素数の比例定数の位相  $\gamma_1(\theta, \phi, \delta, \alpha)$  と  $\gamma_2(\theta, \phi, \delta, \alpha)$  は、それぞれ以下のようになる。

$$\begin{aligned}\gamma_1(\theta, \phi, \delta, \alpha) &= \arg\left\{\cos\frac{\delta}{2}\cos(\theta-\alpha)+i\sin\frac{\delta}{2}\cos(\theta-2\phi+\alpha)\right\} \\ &= \tan^{-1}\left\{\frac{\cos(\theta-2\phi+\alpha)}{\cos(\theta-\alpha)}\tan\frac{\delta}{2}\right\}.\end{aligned}\quad (5.6)$$

$$\begin{aligned}\gamma_2(\theta, \phi, \delta, \alpha) &= \arg\left\{\cos\frac{\delta}{2}\sin(\theta-\alpha)-i\sin\frac{\delta}{2}\sin(\theta-2\phi+\alpha)\right\} \\ &= \tan^{-1}\left\{\frac{-\sin(\theta-2\phi+\alpha)}{\sin(\theta-\alpha)}\tan\frac{\delta}{2}\right\}.\end{aligned}\quad (5.7)$$

したがって、最終的に得られる幾何学的位相  $\gamma$  は  $\theta, \phi, \delta, \alpha$  の関数となり、以下のようになる。

$$\begin{aligned}\gamma(\theta, \phi, \delta, \alpha) &= \gamma_1(\theta, \phi, \delta, \alpha) - \gamma_2(\theta, \phi, \delta, \alpha) \\ &= \tan^{-1}\left\{\frac{\cos(\theta-2\phi+\alpha)}{\cos(\theta-\alpha)}\tan\frac{\delta}{2}\right\} - \tan^{-1}\left\{\frac{-\sin(\theta-2\phi+\alpha)}{\sin(\theta-\alpha)}\tan\frac{\delta}{2}\right\}.\end{aligned}\quad (5.8)$$

ここで、 $\alpha=0$  のとき、(5.8)式は次のようになる。

$$\gamma(\theta, \phi, \delta, \alpha=0) = \tan^{-1}\left\{\frac{\cos(\theta-2\phi)}{\cos\theta}\tan\frac{\delta}{2}\right\} - \tan^{-1}\left\{\frac{\sin(2\phi-\theta)}{\sin\theta}\tan\frac{\delta}{2}\right\},\quad (5.9)$$

さらに、QWP は  $\delta=\pi/2$  で、その進相軸方位が  $\phi=\pi/4$  の場合には、次のようになる。

$$\begin{aligned}\gamma(\theta, \phi=\pi/4, \delta=\pi/2, \alpha=0) &= \gamma_1(\theta, \pi/4, \pi/2, 0) - \gamma_2(\theta, \pi/4, \pi/2, 0) \\ &= \tan^{-1}(\tan\theta) - \tan^{-1}(\cot\theta) = 2\theta - \pi/2.\end{aligned}\quad (5.10)$$

式(5.10)の場合、検光子の方位角  $\theta$  ( $0 \leq \theta \leq \pi/2$ ) に対して  $\gamma$  は線形に変化する。一方、一般の場合、(5.8)式は非線形に変化する。

#### 5.2.4 旋光角の波長依存性 $\alpha(\lambda)$ の推定手順

図 5.1 に示した modified MC-FTS を用いて試料の旋光度の波長依存性（旋光分散） $\alpha(\lambda)$  を測定する流れを図 5.3 に示す。前提条件として、QWP の方位  $\phi$  を適切な方位に固定する。また、QWP の  $\delta(\lambda)$  はセルマイヤーの実験式から求められるために既知とし[22]、白色 LED を光源とする。

まず、試料を挿入して検光子の方位角  $\theta_i$  を  $0 \sim \pi$  (原理的には  $0 \sim \pi/2$  で十分であるが) で段階的に変化させながら複数個のインタフェログラムを測定する。ここで、 $\theta_i = \pi i / N$  ( $i = 0, 1, \dots, N$ ) とする。それらをフーリエ変換して、位相スペクトル  $p(\theta_i, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))$  を求める。一方、(5.8) 式の Jones 偏光行列から  $\gamma(\theta_i, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))$  を計算する。そして、次に示す最小二乗規範  $e$  が最小となるように非線形最適化を行い波長毎に  $\alpha(\lambda)$  を推定する。

$$e = \sum_{i=0}^N \{p(\theta_i, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) - \gamma(\theta_i, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))\}^2. \quad (5.11)$$

しかし、実際に測定されるスペクトルの位相には、試料に起因する GP 以外に光学素子の分散等に起因する波長依存の位相成分や光学系の配置に起因するバイアス位相が混入している。したがって、それらの成分をあらかじめ除去する必要がある。そのために、波長毎に特定の  $\theta$  (ここでは  $\theta = 0^\circ$ ) での位相  $p(\theta = 0^\circ, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))$  を基準にした相対的な位相  $P(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))$  を定義し直す。すなわち、次式のように、波長毎に異なる一定のバイアス位相成分を差し引いておく。

$$P(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) = p(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) - p(0, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)). \quad (5.12)$$

同様に、(5.8)式から計算で求められる  $\gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))$  も、次のように定義し直す。

$$\Gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) = \gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) - \gamma(0, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)). \quad (5.13)$$

これら2つの位相に対して、試料がある場合 ( $\alpha \neq 0$ ) とない場合 ( $\alpha = 0$ ) の  $P$  と  $\Gamma$  の差  $\Delta P$  と  $\Delta \Gamma$  をそれぞれ以下のように求める。

$$\Delta P(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) = P(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) - P(\theta, \phi, \delta(\lambda), 0). \quad (5.14)$$

$$\Delta \Gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) = \Gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) - \Gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), 0). \quad (5.15)$$

そして最後に、(5.11)式と同様、波長毎に次の最小二乗誤差最小規範  $E$  のもとに、 $\alpha(\lambda)$  を推定する。

$$E = \sum_{i=0}^N \{\Delta P(\theta_i, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda)) - \Delta \Gamma(\theta_i, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))\}^2. \quad (5.16)$$

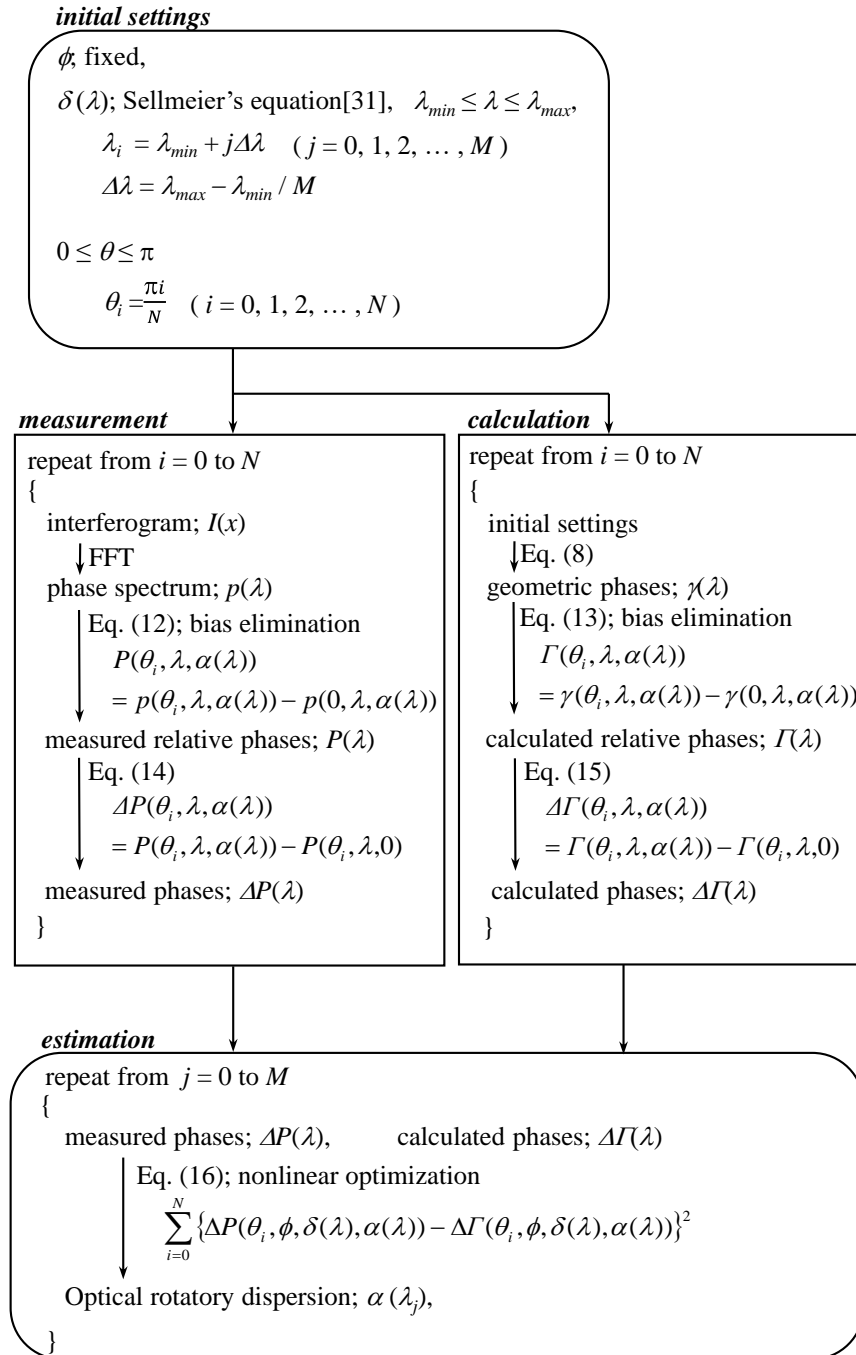


Fig. 3. Flow chart for estimation of ORD,  $\alpha(\lambda)$ .

### 5.3 数値シミュレーション

本節では、前節で示した(5.13)式に基づいて、 $\Gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))$ および  $d\Gamma/d\alpha$ の数値計算結果を示す。本装置を動作させるうえで最も重要な点は、未知の試料の  $\alpha(\lambda)$ に対して、QWPの  $\delta(\lambda)$ を既知として最大感度  $d\Gamma/d\alpha$ を与えるようなQWPの方角  $\phi$ を決定することである。しかし、 $\alpha$ と  $\delta$ は波長の関数であるため、最適な  $\phi$ は波長毎に異なり、一つに決定するのは困難である。

そこでまず、 $\Gamma$ の挙動を $\theta$ の関数として測定するという装置の立場で、試料がない $\alpha=0$ もしくは非常に微小である場合の $\Gamma$ の $\phi$ と $\delta$ への依存性をそれぞれ独立に調べた。次に、そのときに $\Gamma$ の非線形挙動が明確に観測されるような $\phi$ と $\delta$ の組み合わせを抜き出し、微小な $\alpha$ に対する感度 $d\Gamma/d\alpha$ を $\theta$ の関数として調べた。

### 5.3.1 装置のパラメータの相互依存性

図 5.4 の(a)~(f)は、それぞれ図 5.2 の(a)~(f)に対応させて $\Gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))$ を $\theta$ の関数として計算した結果である。 $\Gamma(\theta, \phi=45^\circ, \delta=90^\circ, \alpha=0^\circ)$ のプロットは図 5.4(a)のように線形となる。ここで、 $\alpha$ が0でない時は、(5.8)式より明らかに $\Gamma(\theta, \phi, \delta(\lambda), \alpha(\lambda))$ は $\theta$ に関して非線形な関数となる。例えば $\Gamma(\theta, \phi=\pi/4, \delta=\pi/2, \alpha=\pi/18)$ をプロットすると図 5.4(b)となる。さらに、 $\phi \neq \pi/4$ として、 $\Gamma(\theta, \phi=17\pi/36, \delta=\pi/2, \alpha=\pi/18)$ をプロットすると、図 5.4(c)のように非線形な挙動がより強調される。同様に、図 5.2(d),(e),(f)に対応させて、 $\Gamma(\theta, \phi=\pi/4, \delta=7\pi/18, \alpha=0)$ 、 $\Gamma(\theta, \phi=\pi/4, \delta=7\pi/18, \alpha=\pi/18)$ および $\Gamma(\theta, \phi=17\pi/36, \delta=7\pi/18, \alpha=\pi/18)$ をプロットすると、図 5.4(d),(e),(f)のようになる。

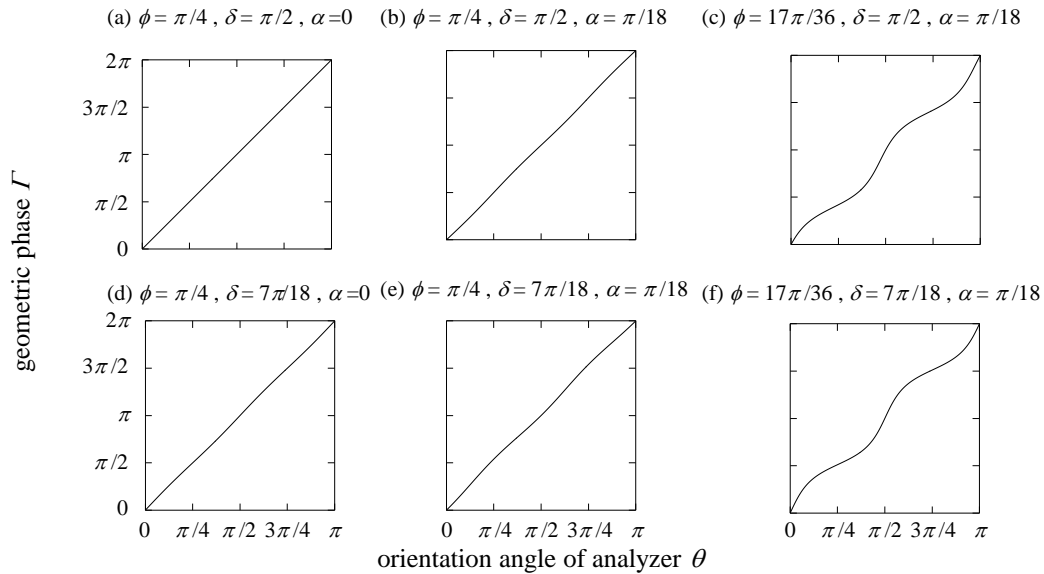


Fig. 5. 4. Plots of  $\Gamma$  as a function of  $\theta$ , where: (a) shows  $\Gamma(\theta, \phi=\pi/4, \delta=\pi/2, \alpha=0)$ , (b) shows  $\Gamma(\theta, \phi=\pi/4, \delta=\pi/2, \alpha=\pi/18)$ , (c) shows  $\Gamma(\theta, \phi=17\pi/36, \delta=\pi/2, \alpha=\pi/18)$ , (d) shows  $\Gamma(\theta, \phi=\pi/4, \delta=7\pi/18, \alpha=0)$ , (e) shows  $\Gamma(\theta, \phi=\pi/4, \delta=7\pi/18, \alpha=\pi/18)$ , and (f) shows  $\Gamma(\theta, \phi=17\pi/36, \delta=7\pi/18, \alpha=\pi/18)$ .

図 5.4(c)や(f)をさらに詳しく見ると、 $\phi$ を $\pi/4$ から $\pi/2$ もしくは $0^\circ$ に接近させ $\Gamma$ を $\theta$ の関数として測定すると、 $\Gamma$ は大きな非線形挙動を示す。つまり、ある特定の $\theta(0, \pi/2$  および $\pi$ の近傍)で $d\Gamma/d\theta$ の絶対値が大きくなる。しかし、このときサバル板で分けられた干渉するべき2つの



偏光は QWP でほとんど偏光状態を変えられずにほぼ直交した直線偏光となるため、干渉縞の可視度は低下する。これは、干渉縞の可視度を犠牲に位相検出の感度を上げているととらえることができ、干渉縞の可視度がゼロになったときに測定感度は無限大になる。しかし、可視度がゼロになると測定することは不可能となるので、実際の測定ではその近辺の値を利用することになる。これは、量子光学で弱測定として知られる手法の一種であると考えられる[14].

一方で、 $d\Gamma/d\theta$  は  $\delta(\lambda)$  にも大きく依存する。この事実は、旋光度測定の感度を  $d\Gamma/d\alpha$  として定義すると、それは  $\theta$  と  $\phi$  の設定に大きく依存するだけでなく、また  $\delta(\lambda)$  にも依存することを意味する。旋光度測定の感度に対する波長の影響の大きさを次節で検討する。

### 5.3.2 感度評価および最適パラメータの設計方法

感度評価を行うために、いくつかの数値計算を行った。式(5.13)より、旋光分散計測の感度は以下のように定義できる。

$$\partial\Gamma/\partial\alpha = \partial\gamma/\partial\alpha - [\partial\gamma/\partial\alpha]_{\theta=0}. \quad (5.17)$$

そこで、式(5.8)より

$$\partial\gamma/\partial\alpha = X \cos^2 \gamma_1 - Y \cos^2 \gamma_2, \quad (5.18)$$

と書ける。このとき、

$$\begin{aligned} X &= \frac{-\sin(\theta-2\phi+\alpha)}{\cos(\theta-\alpha)} \tan \frac{\delta}{2} - \frac{\cos(\theta-2\phi+\alpha)}{\cos^2(\theta-\alpha)} \sin(\theta-\alpha) \tan \frac{\delta}{2} \\ Y &= \frac{-\cos(\theta-2\phi+\alpha)}{\sin(\theta-\alpha)} \tan \frac{\delta}{2} - \frac{\sin(\theta-2\phi+\alpha)}{\sin^2(\theta-\alpha)} \cos(\theta-\alpha) \tan \frac{\delta}{2}. \end{aligned} \quad (5.19)$$

である。

図 5.5 は、 $\phi=60^\circ$ 、 $80^\circ$ および $85^\circ$ における  $\partial\Gamma/\partial\alpha$  を  $\theta$  の関数として計算した結果である。(a)から(d)はそれぞれ波長 $\lambda$ が、(a)  $\lambda=400$  nm ( $\delta=150.3^\circ$ )、(b)  $\lambda=500$  nm ( $\delta=116.3^\circ$ )、(c)  $\lambda=600$  nm ( $\delta=95.4^\circ$ )および (d)  $\lambda=700$  nm ( $\delta=80.8^\circ$ )のときのグラフである。図 5.5 より、どの波長においても、 $\partial\Gamma/\partial\alpha$  の値は、非線形挙動の大きくなる  $\phi=85^\circ$  で  $\theta=\pi/2$  および  $\pi$  に近い値で増加している。特に短波長側である  $\lambda=400$  nm のときには、 $\phi=85^\circ$  かつ  $\theta=80^\circ$  の点で GP の非線形効果がない場合に比べて 1000 倍以上の測定感度がある。ほかの波長であっても、 $\phi=85^\circ$  かつ  $\theta \cong 80^\circ$  の点では 600 倍以上の測定感度があることになる。

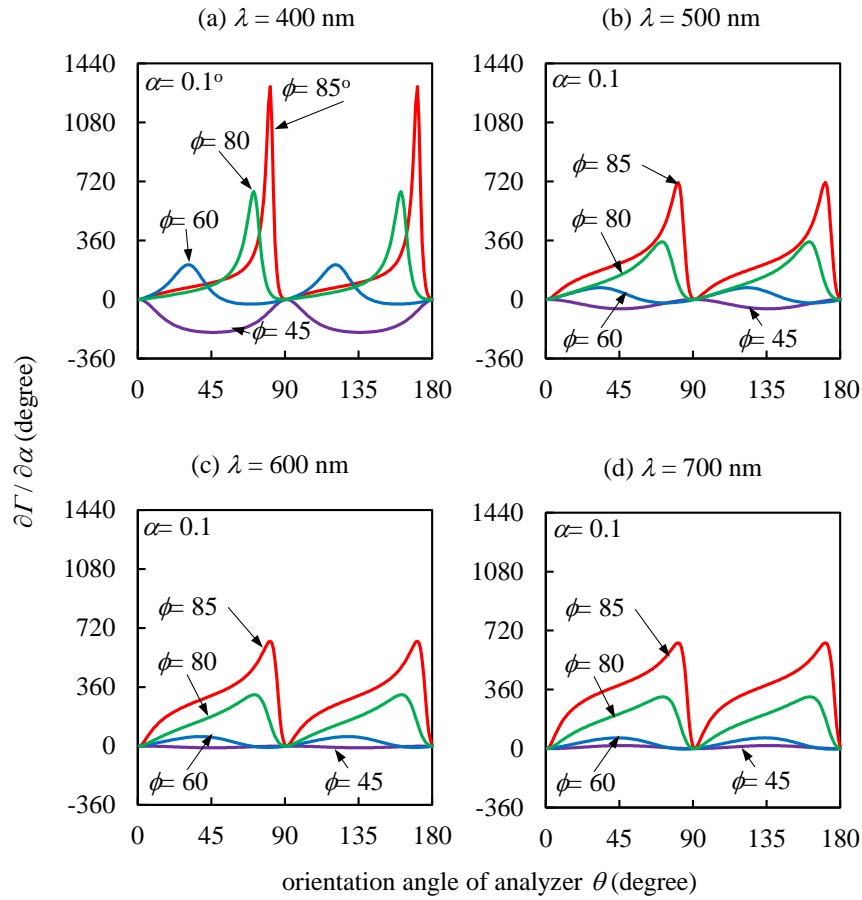


Fig. 5.5. Plots of  $\partial\Gamma/\partial\alpha$  as a function of  $\theta$  for  $\alpha=0.1^\circ$  with  $\phi=45^\circ, 60^\circ, 80^\circ$ , and  $85^\circ$ : (a)  $\delta=150.3^\circ$  ( $\lambda=400\text{nm}$ ), (b)  $\delta=116.5^\circ$  ( $\lambda=500\text{nm}$ ), (c)  $\delta=95.4^\circ$  ( $\lambda=600\text{nm}$ ), and (d)  $\delta=80.8^\circ$  ( $\lambda=700\text{nm}$ ).

そこで、図 5.6(a)に、 $\phi=85^\circ$  かつ  $\theta=80^\circ$  の点における  $\partial\Gamma/\partial\alpha$  を  $\alpha$  の関数として計算した結果を示す。このとき、波長は 400nm から 700nm まで 100nm 刻みで計算した。 $\phi=85^\circ$  かつ  $\theta=80^\circ$  というパラメータ設定では、波長にかかわらず  $\alpha \cong 0^\circ$  のときに測定感度が大きくなっている。もし、測定する  $\alpha$  が大きくなって(例えば  $\alpha \cong 45^\circ$ )十分な測定感度が得られなくなったときには、 $\phi$  と  $\theta$  の値を変更することで最大感度の得られる領域を変更することができる。図 5.6(b)に、 $\phi=60^\circ$  かつ  $\theta=55^\circ$  としたときのグラフを示す。このときは、 $\alpha \cong 60^\circ$  のときの測定感度が大きくなっている。

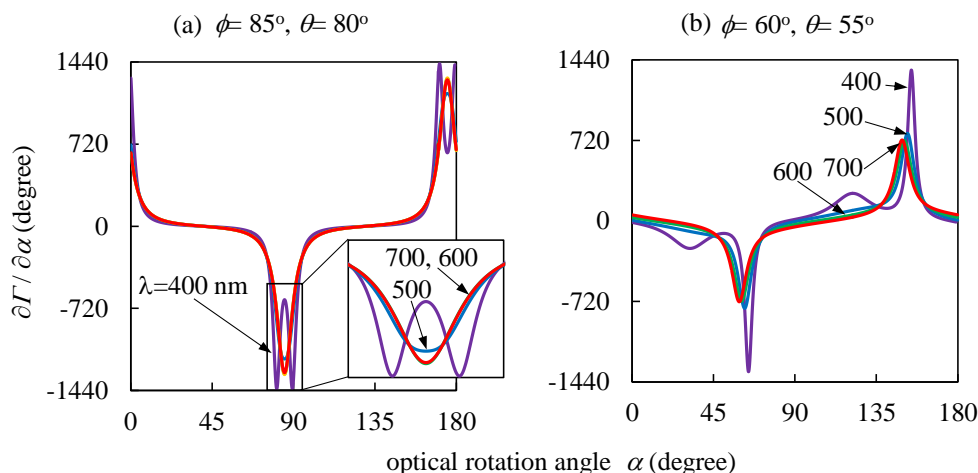


Fig. 5.6. (a) Plots of  $\partial\Gamma/\partial\alpha$  as a function of  $\alpha$  with  $\phi=85^\circ$  and  $\theta=80^\circ$  at  $\lambda=400$  nm, 500 nm, 600 nm, and 700 nm, and (b) the same plots as in (a) again, but with  $\phi=60^\circ$  and  $\theta=55^\circ$ .

#### 5.4 測定結果および考察

5.2節で示した MC-FTS でのインタフェログラム測定においては、検光子 A の方位を  $\theta$  から  $\theta + \pi/2$  とすると干渉縞の位相が  $180^\circ$  ずれる。したがってその 2 つの方位で測定したインタフェログラムの差をとれば（プッシュプル測定を行えば）、信号成分は 2 倍となり干渉縞測定における不要な dc バックグラウンド成分が除去できる[16]。以下の測定はすべてそのようにして行った。また、使用した  $\text{CaCO}_3$  製サバール板の空間分離量には波長依存性があるため、その補正を行った後、発振波長 635 nm と 410 nm のレーザダイオードを用いて波長較正を行った

原理検証実験を目的として、厚さ 2.1nm と 0.5nm の 2 種類の右旋性の水晶板の旋光分散の測定を行った。図 5.7 に測定結果を示す。測定したときの室温は  $20.0^\circ\text{C}$  に維持し、測定回数  $N=36$ 、modified MC-FTS の QWP の角度は  $\phi=17\pi/36$  とした。図 5.7 の実線は実験式として知られている  $\alpha(\lambda)=\alpha_\lambda l$  より計算した計算値である。このとき、

$$\alpha_\lambda = -0.1963657 + 7.262667/\lambda^2 + 0.1171867/\lambda^4 + 0.0019554/\lambda^6, \quad (5.20)$$

である。ここで、 $\alpha_\lambda$  (degree/mm) は温度  $20.0^\circ\text{C}$  のときの波長  $\lambda$  における旋光度である。測定した値は波長 450nm から 800nm の領域では計算値と良い一致を示している。短波長側でみられる青点の実線からのばらつきは実験誤差であると考えられる。

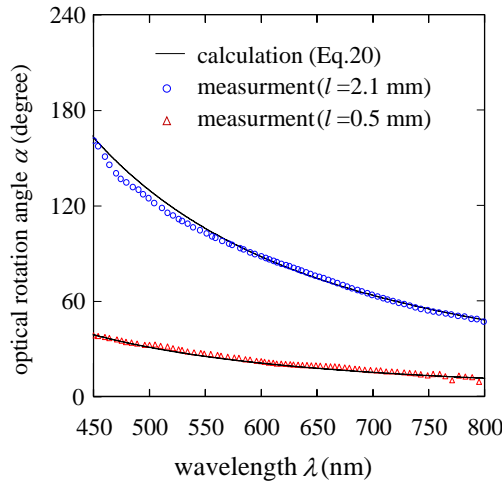


Fig. 5.7.  $\alpha(\lambda)$  of dextro-rotatory quartz plates with thicknesses of  $l=2.1$  mm and  $l=0.5$  mm. Solid lines denote numerically calculated values based on Eq.(20).

本提案手法は静的測定であり，変調やロックインによる信号検出を行っていない．偏光計測を静的測定で高感度に行っている点は特に重要である．ここで定義する測定感度は， $\phi=\pi/2$  もしくは  $0^\circ$  のとき， $\alpha$  が  $0$  に近い値であれば干渉縞の可視度を犠牲にすることで無限大になる可能性がある．したがって，「弱測定」という意味で，提案手法は応用に向けた大きな可能性を示したとも言える．しかし，実際には可視度がゼロとなるパラメータ設定を使用することはできないため，旋光度  $\alpha$  の下限検出限界(LDL)は，PDA から得られたインタフェログラムから計算された位相スペクトルの精度によって最終的には決定されてしまう．本論で提案したシステムでは， $\alpha$  の LDL はおよそ  $0.1^\circ$  であると推定される．LDL を向上するためには，波長情報を有効に活用する必要があると考えられる．この点が今後の課題である．

## 5.5 結言

偏光計測の高精度化に関する新たな試みとして，偏光の幾何学的位相(GP)の非線形挙動を利用した新たな旋光分散測定法を提案した．マルチチャンネルフーリエ分光器(MC-FTS)に零次の  $\lambda/4$  板(QWP)を組み込んだ測定系を考案・試作し，数値シミュレーションと原理検証実験を行った．

GP の非線形挙動は，測定感度を著しく向上させる可能性を秘めているが，実際に使用する上では適切な測定条件の設定と考察が必要である．ここでの提案手法では変調手法に代表されるような SN 比向上の試みは何ら使用しない“静的”な測定である．したがって，そのような手法をうまく併用できればさらなる改善も期待できる．

## 参考文献

- [1] S. Pancharatnam, “Generalized theory of interference and its applications: Part I. Coherent pencils,” *Proc. Ind. Acad. Sci. A* **XLIV**(5), (1956), 247–251.
- [2] S. Pancharatnam, “Generalized theory of interference and its applications: Part II. Partially coherent pencils,” *Proc. Ind. Acad. Sci. A* **XLIV**(6), (1956), 398–412.
- [3] M. V. Berry, “Quantum phase factors accompanying adiabatic changes,” *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **392**, (1984), 45–47.
- [4] P. K. Aravind, “A simple proof of Pancharatnam’s theory,” *Opt. Commun.* **94**(4), (1992), 191–196.
- [5] H. Schmitzer, S. Klein, and W. Dultz, “Nonlinearity of Pancharatnam’s topological phase,” *Phys. Rev. Lett.* **74**(10), (1993), 1530–1533.
- [6] R. Bhandari, “Geometric phase in interference experiments,” *Curr. Sci.* **67**(4), (1994), 224–230.
- [7] G. D. Love, “The unbounded nature of geometrical and dynamical phases in polarization optics,” *Opt. Commun.* **131**(4–6), (1996), 236–240.
- [8] J. Courtial, “Wave plates and the Pancharatnam phase,” *Opt. Commun.* **171**(4–6), (1999), 179–183.
- [9] N. Murakami, K. Kato, N. Baba, and T. Ishigaki, “Geometric phase modulation for the separate arms in nulling interferometer,” *Opt. Commun.* **237**(1–3), (2004) 9–15.
- [10] T. Wakayama, Y. Otani, and N. Umeda, “Birefringence dispersion measurement based on achromatic four points of geometric phases,” *Opt. Eng.* **45**(8), (2006) 083603.
- [11] S. Tamate, H. Kobayashi, T. Nakanishi, S. Sugiyama, and M. Kitano, “Geometrical aspects of weak measurements and quantum erasers,” *New J. Phys.* **11**, (2009) 093025.
- [12] P. Kurzynowski, W. A. Woźniak, and M. Szarycz, “Geometric phase: two triangles on the Poincaré sphere,” *J. Opt. Soc. Am. A* **25**(3), (2011) 475–482.
- [13] J. C. Gutiérrez-Vega, “Pancharatnam-Berry phase of optical systems,” *Opt. Lett.* **36**(7), (2011) 1143–1145.
- [14] H. Kobayashi, S. Tamae, T. Nakanishi, K. Sugiyama, and M. Kitano, “Observation of geometric phases in quantum erasers,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, (2011) 034401.
- [15] M. Hashimoto and S. Kawata, “Multichannel Fourier-transform infrared spectrometer,” *Appl. Opt.* **31**(28), (1992) 6096–6101.
- [16] T. Okamoto, S. Kawata, and S. Minami, “Fourier transform spectrometer with a self-scanning photodiode array,” *Appl. Opt.* **23**(2), (1984) 269–273.
- [17] H. Aryamany-Mugisha and R. R. Williams, “A Fourier transform diode array spectrometer for the UV, visible, and near IR,” *Appl. Spectrosc.* **39**(4), (1985) 693–697.
- [18] T. H. Barns, “Photodiode array Fourier transform spectrometer with improved dynamic range,” *Appl. Opt.* **24**(22), (1985) 3702–3706.
- [19] T. Okamoto, S. Kawata, and S. Minami, “A photodiode array Fourier transform spectrometer based on a birefringent interferometer,” *Appl. Spectrosc.* **40**(5), (1986) 691–695.

- [20] M.-L. Junttila, "Stationary Fourier-transform spectrometer," *Appl. Opt.* 31(21), (1992) 4106–4112.
- [21] J. Courtil, B. A. Patterson, A. R. Harvey, W. Sibbett, and M. J. Padgett, "Design of a static Fourier-transform spectrometer with increased field of view," *Appl. Opt.* 35(21), (1998) 6698–6707.
- [22] K. Oka and T. Kaneko, "Compact complete imaging polarimeter using birefringent wedge prisms," *Opt. Express* 11, (2003) 1510–1519.

## 6章 総括

本論文のテーマは「物性情報抽出のための偏光解析手法と応用に関する研究」として、そのターゲットを特に強誘電体結晶に絞り、その異方性をミューラー偏光行列の手法を用いて解析した結果と手法の提案を行った。

第1章では、偏光解析法が必要とされる分野を提示し、現在は応用研究が主流となっていることを述べた。また、強誘電体は優れた材料であることを述べた。そして、現在では強誘電体は様々な分野で幅広く用いられているが、その評価法として偏光解析法を用いた例が非常に少ないことを指摘した。また、偏光解析法を適用した場合に考えられる利点を明示した。特に重要な利点は、非接触・非破壊で試料に影響を与えず計測可能なために、従来の手法では評価が困難であった試料の評価を可能とする点である。

第2章では、強誘電体の評価に偏光解析法を適用する上で必要となる、強誘電体の分極と偏光の相互作用について詳述した。まず、強誘電体の特性を決定する分極とその構造について述べ、その構造中を透過する光の変化が偏光特性として現れることを述べた。また、それを定量的に扱う手法としてのミューラー偏光行列について説明し、その解析手法としてミューラー行列再構成についてまとめた。

第3章では、「ミューラー行列計測を用いた強誘電体の光学特性評価法」を提案した。はじめに、測定装置として2重回転位相子型偏光計の測定およびキャリブレーション手法を説明し、作製した装置の構成および精度検定の結果を示した。そして、検証実験として、代表的な強誘電体セラミックスであるチタン酸ジルコン酸ランタン鉛(PLZT)の測定結果を示した。強誘電体の偏光解消を含む全偏光特性を測定した例は他になく、光学特性の高精度な評価が特に必要とされる可変焦点レンズなどの開発において非常に有用な手法となると考えられる。

第4章では、「ミューラー行列偏光顕微鏡を用いた強誘電体の分域構造の観察法」を提案した。これは、第3章での結果を展開したものである。すなわち、ミューラー行列を用いた強誘電体の評価が精度よく行えるという実験結果を受け、光学顕微鏡にミューラー行列偏光計を組み込んで強誘電体の分域構造の観察を可能にした結果について述べた。従来の手法に対して空間分解能は劣るが、非接触・非破壊で観察が行えるため、動作中のデバイスの分域構造を観察するなどの新たなアプローチが可能となった。

第5章では、「幾何学的位相の非線形挙動を利用した偏光計測の高感度化」について検討した結果を示した。第4章までの結果から、本論文で提案した手法は最終的には偏光特性の測定感度が実用上のボトルネックとなることが明らかになった。そこで、測定対象である強誘電体から視野を広げ、測定手法自体の見直しを行った。すなわち、偏光の幾何学的位相と弱測定概念に着目し、偏光計測の測定感度の向上について、さらにはその波長依存性も含めて検討した結果を述べた。強誘電体の評価法として位置づけには未着手で、手法の提案に留まったが、偏光特性の一つである旋光性の波長分散計測の精度向上について有用な知見を得た。

最後に今後の研究の方向性について簡単にまとめる。測定で得たミュラー行列の解析に関しては、第3章、4章でも記述したように Chipman が提案したミュラー行列の極分解アルゴリズムが一般に受け入れられている。そこでは、与えられたミュラー行列を吸収、位相差、偏光解消といった要素の順番で、それらに対応するミュラー行列に分解する。この手法の有効性については、特に生体関係分野で実験的に検証が行われている。この手法の優れた点の一つは、ミュラー行列を用いているため、完全偏光しか取り扱えないジョーンズ行列と異なり、試料の偏光解消を定量的に取り扱える点にある。しかし、解析する系に対してミュラー行列の交換則が成立するかどうかの検討や、複数の偏光特性を同一空間に併せ持つような系に対しては自ずと適用限界があるとも考えられる。これに対して「ジョーンズ(Jones) N 行列法」という手法が存在している。ジョーンズ N 行列法は、複数の偏光が混在・同居する系を同定する手法として、「 $\theta$ 行列法」として提案されたものである。しかし、今日まで意外なほど使用されていない。その理由は2つあると思われる。一つは、計算機の進歩により、そのような複数の偏光特性を併せ持つ系に対しては、非常に薄い膜の多層の集合体として試料をモデル化しつつ最適解を探すのが一般的になったためである。もう一つは偏光解消のある系には適用できないという問題点があるためと思われる。しかし、複数の偏光が混在・同居する系をそのまま同定できるジョーンズ N 行列法は、ミュラー行列に分解する手法とは本質的に異なっている。したがって偏光解析法によって物性情報を抽出するにあたって今後の方向性として大いに着目すべき点と思われる。もう一つの重要な観点が、本論文の最後で取り扱った「幾何学的位相の非線形挙動を利用した偏光計測の高感度化」である。このような「光の弱測定」の概念は応用範囲が広く、いくつかの報告がなされてきている。純学術的な研究分野としても興味深い。



## 研究業績

### 本研究に関する業績

#### 3 章

##### 原著論文

1. M. Ginya, Y. Mizutani, T. Iwata, Y. Otani, “Method Using Optical Polarization For Achieving Low-Voltage-Driven Ferroelectric Memory Devices”, International Journal of Optomechanics, **7**, 253-262 (2013)
2. M. Ginya, Y. Mizutani, T. Iwata, Y. Otani, “Polarization properties of PLZT under applied voltage measured by dual-rotating retarder polarimeter”, Physics Procedia, **19**, 398-402 (2011)

##### 国際会議発表

1. M. Ginya, Y. Mizutani, T. Iwata, Y. Otani, “Low-voltage driven method of ferroelectric memory device using optical polarization property”, ISOT 2012 International Symposium on Optomechatronic Technologies, Paris, Nob. 2012.
2. M. Ginya, Y. Mizutani, T. Iwata, Y. Otani, “Polarization properties of PLZT under applied voltage measured by dual-rotating retarder polarimeter”, International Conference on Optics in Precision Engineering and Nanotechnology, Singapore, Mar. 2011.

##### 国内学会発表

1. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「PLZT の全偏光特性を考慮した複屈折性メモリデバイス」の開発」、第 51 回光波センシング技術研究会講演会、LST51-11 項、東京、2013 年 6 月
2. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「偏光特性を用いた低電圧駆動型強誘電体メモリデバイス」の開発(第 1 報)-偏光特性計測によるメモリ効果の観察-」、2012 年度精密工学会秋季大会学術講演会、F74 項、福岡、2012 年 9 月
3. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「ミューラー行列を用いた PLZT の全偏光特性計測」、2011 年度計測自動制御学会四国支部学術講演会、PS1-13 項、徳島、2011 年 11 月
4. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「ミューラー行列計測による PLZT の偏光特性の電圧依存性 (第 3 報)、-PLZT と LiNbO<sub>3</sub> の比較-」、2011 年精密工学会秋季大会学術講演会、M38 項、石川、2011 年 9 月
5. 水谷康弘、銀屋真、岩田哲郎、大谷幸利、「ミューラー行列計測による PLZT の偏光特性解析 (第 2 報)、-偏光解消と主軸方位の電圧依存性-」、2011 年精密工学会春季大会学術講演会、O78 項、東京、2011 年 2 月
6. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「二重回転位相子型偏光計を用いた PLZT の偏光特性の電圧依存性」、2010 年度中国四国支部徳島地方学術講演会、徳島、2010 年 11 月

#### 4 章

##### 原著論文

1. M. Ginya, Y. Mizutani, T. Iwata, Y. Otani, “All polarization properties of PLZT ferroelectric ceramics observed in two dimensional distributions under applied voltage by the Mueller matrix”, Sensors and Actuators A: Physical, **200**, 37-43 (2013)

#### 国際会議発表

1. M. Ginya, Y. Mizutani, T. Iwata, Y. Otani, “All polarization properties of PLZT ferroelectric ceramics observed in two dimensional distributions under applied voltage by the Mueller matrix”, International Workshop on Piezoelectric Materials and Applications in Actuators 2012, 1aOB02, Hirosaki, Apr. 2012.
2. Y. Mizutani, M. Ginya, T. Iwata, Y. Otani, “Domain-size dependency of all polarization properties of PLZT crystal”, ISOT 2011 International Symposium on Optomechatronic Technologies, p.57, Hong Kong, Nov. 2011.

#### 国内学会発表

1. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「2重回転位相子型偏光計を用いた PLZT の全偏光特性計測」、第 59 回応用物理学会関係連合講演会、16p-B3-13 項、東京、2012 年 3 月
2. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「ミュラー行列計測による PLZT の偏光特性の電圧依存性(第 4 報)一分域内の偏光特性分布」、2012 年精密工学会春季大会学術講演会、M20 項、東京、2012 年 3 月

## 5 章

### 原著論文

1. M. Ginya, M. Kimura, T. Iwata, “Optical-rotatory-dispersion measurement approach using the nonlinear behavior of the geometric phase”, Optics Express, **25**, 3024-3037 (2017)

### その他研究に関する業績

#### 国内学会発表

1. 銀屋真、岩田哲郎、「Jones N 行列で表される系の極分解の検討」、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、7a-PA5-2 項、福岡、2017 年 9 月
2. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「反射型偏光顕微鏡による強誘電体表面の光学的異方性評価」、第 61 回応用物理学会春季学術講演会、20p-F11-8 項、神奈川、2014 年 3 月
3. 立嶋知彦、銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、「全方位ミュラー行列偏光顕微鏡の開発」、2014 年度精密工学会春季大会学術講演会、B44 項、東京、2014 年 3 月
4. 立嶋知彦、銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、「全方位ミュラー行列偏光顕微鏡の開発(第一報)角度スペクトルの測定」、精密工学会中四国支部広島地方講演会、広島、2013 年 11 月
5. 銀屋真、水谷康弘、岩田哲郎、大谷幸利、「エリプソメトリ顕微鏡を用いた強誘電体表面の分域構造観察」、2013 年度精密工学会秋季大会学術講演会、H38 項、東京、2013 年 9 月

## 受賞歴等

1. 精密工学、Best Article Award、2013 年 11 月
2. 日本学術振興会、特別研究員(DC1)、2013 年 4 月 – 2016 年 3 月
3. 日本学生支援機構、特に優れた業績による奨学金返還免除(全額免除)、2013 年 3 月
4. 財団法人康楽会、平成 24 年度康楽会賞、2013 年 1 月
5. 精密工学、Best Article Award、2012 年 11 月
6. 精密工学会 2012 年度春季全国大会ベストプレゼンテーション賞、2012 年 3 月
7. 2011 年度計測自動制御学会四国支部学術講演会優秀講演賞、2011 年 11 月
8. 2010 年度精密工学会中国四国支部徳島地方学術講演会優秀講演賞、2010 年 11 月

## 謝辞

本論文は、徳島大学大学院先端技術科学教育部博士前期および後期課程に在籍中の研究成果をまとめたものである。同学大学院社会産業理工学研究部教授・岩田哲郎先生には指導教官として長年に亘ってご指導戴きました。先生のご尽力なくしては本論文を取りまとめることは不可能であったと思われます。ここに深謝の意を表します。

本論文作成にあたり、同研究部教授・安井武史先生、ならびに中村浩一先生には、大変ご多忙の中、副査としてご助言を戴くとともに本論文の細部にわたりご指導戴戴きました。ここに深謝の意を表します。

大阪大学工学研究科准教授・水谷康弘先生には、徳島大学に在籍されていた間に非常に熱心にご指導して戴きました。私の研究者としての基礎は水谷先生の教えによって形作られたとって過言ではありません。ここに深謝の意を表します。

宇都宮大学工学研究科教授・大谷幸利先生には研究に関して多くの助言とご協力を戴きました。ここに深謝の意を表します。

徳島大学工学部光応用計測研究室の学生諸氏には、本研究を進めるにあたり多大な協力を戴きました。特に、同輩の水野孝彦氏、渋谷九輝氏には大学生活を送るうえで多くの助けを戴きました。また、後輩の長田悠希氏、立島知彦氏は頼りになる後輩として研究に良い刺激を与えてくれました。ここに感謝の意を表し、厚く御礼申し上げます。

本研究を進めるにあたり日本学術振興会の特別研究員奨励費(25・10025)の助成を受けました。ここに感謝の意を表します。

最後に、博士後期課程への進学を認め、私生活を支え続けてくれた家族に感謝の意を捧げます。

平成 30 年 3 月吉日

銀屋 真