分光ミューラー行列偏光計

大 谷 幸 利

宇都宮大学 オプティクス教育研究センター ☎ 321-8585 栃木県宇都宮市陽東7丁目1-2

(2014年4月14日受付; 2014年7月11日掲載決定)

Spectroscopic Mueller Matrix Polarimetry

Yukitoshi OTANI

Center for Optical Research and Education, Utsunomiya University, 7-1-2 Yoto, Utsunomiya, Tochigi 321-8585

(Received April 14, 2014 ; Accepted July 11, 2014)

Polarization tool as ellipsometry is a classic but still new technology. It is used in various fields : from materials science, such as the newest nanotechnology and optical function material, to biotechnology in recent years. It has been developing into the new areas, called polarization science and polarization technology. This paper reviews a measurement method for spectroscopic Mueller matrix such as a dual rotating retarder type polarimeter, a liquid crystal phase modulation type polarimeter, and a channeled spectrum polarimeter. In addition, the important analysis is introduced for equipment calibration and a decomposition method from obtained Mueller matrix.

KEYWORDS : spectroscopic Mueller matrix, Mueller matrix polarimeter, Stokes parameters, decomposition

1. は じ め に

偏光は古くて新しい技術である。近年、最新のナノテクノロジー、光機能性材料などの材料科学から生命工学まで様々な分野で偏光がキーワードとなり、一種の偏光科学とか偏光工学といわれる分野にまで発展している。一般に、光のそのものの偏光状態は、直線偏光、楕円偏光や円偏光としてジョーンズベクトルで表される¹⁾。また、物質の光学特性は、反射による偏光変化、複屈折、二色性や円二色性としてジョーンズ行列で表すことができる。しかしながら、実際には物理量の多様化に伴い、直線偏光、円偏光などの完全偏光に加えて、部分偏光や非偏光（ランダム偏光）が存在する。これらの偏光状態は、ストークス・パラメータとして表現できる。また、光学特性には、複屈折や二色性のほかに偏光解消が存在する。これらは、ミューラー行列として取り扱うことができる。さらに、これらの偏光状態が混在することも多々起こっており、その解釈がますます重要になってくる。反射光の偏光特性をとらえるエリプソメータが有名であ

る。一般に、表面状態の解析には、楕円率角と楕円化方位を求めるエリプソメータが用いられている^{2,3)}。これにより、薄膜の厚さや屈折率を求めることができる。しかしながら、サンプルの構造による散乱が発生する場合、偏光解消が起こる。この場合には、エリプソパラメータのみでは不十分である。これに対して、ストークス・パラメータやミューラー行列は非偏光まで評価できるので、今後の材料評価の高品位化には重要なファクターになると考える。現在では、エリプソメータでミューラー行列から解析を行っている手法をミューラー行列エリプソメータと呼んでいる。

Table 1 は、物質の偏光特性を表すジョーンズ行列とミューラー行列の偏光自由度を示す。ジョーンズ行列は2行2列の4要素を実数と虚数で表現する8自由度である。これに対してミューラー行列は4行4列の16自由度（スカラー量）である。偏光特性は大きく分けて、①偏光の位相変化を表す位相遅れ（retardation）、②偏光の吸収（減衰変化）を表す複吸収（diattenuation）、③偏光のスクランブルを表す偏光解消（depolarization）に分類することができる⁴⁾。さらに、リターダンスは直線複屈折と円複屈折（旋光）に、ダイアテニユエーションは直線

Table 1. Freedom of polarization properties.

Freedom	polarization properties	physical properties	calculation process	
1	non	phase (wavefront aberration)	Jones matrix	Mueller matrix
2		intensity (transmittance)		
3, 4	retardance	(linear) birefringence [magnitude, direction]		
5		(circular) birefringence [circular activity, optical rotation]		
6, 7	diattenuation	(linear) diattenuation (dicroism) [magnitude, direction]		
8		(circular) diattenuation (circular dicroism)		
9~16	depolarization	depolarization		

複吸収（二色性）と円複吸収（円二色性）という偏光特性で表すことができる。

一般に、ミューラー行列を計測した場合、位相遅れ、複吸収、および偏光解消が混在してしまう。これをデコンポジション法で分離することで偏光特性のパラメータなど個々の物理量として求めることが可能となる⁴⁾。たとえば、散乱によって偏光解消している情報から、偏光特性パラメータを取り出すことも可能である。さらに、個々の偏光特性は波長依存性を持つため、これらの組み合わせからなるミューラー行列も波長依存性を持つ。

分光ミューラー行列偏光計で、一般に用いられているのは Azzam によって提案された二重回転位相子型偏光計である⁵⁾。さらに、液晶位相変調器を用いた手法、チャンネルドスペクトルミューラー行列偏光計が代表的な手法である。ここでは、代表的な分光ミューラー行列偏光計とそのデコンポジションについて紹介する。

2. ストークス・パラメータとミューラー行列

ここでは、まず、光の偏光状態を表すストークス・パラメータと偏光素子の偏光状態を表すミューラー行列について述べる^{4,6)}。我々が扱う偏光状態の表現にはジョーンズ行列とストークス・パラメータがある。前者は、単色光でかつ完全偏光のみで成り立ち振幅と絶対位相を扱うことができるが、後者は、インコヒーレント光で部分偏光や非偏光を扱うことができる。さらに、ストークス・パラメータは振幅ではなく光強度を扱うことができる。

Fig. 1 に示すように、 z 軸方向へ進行する光の偏光状態を考える。電気界成分を xy 方向に分け、 E_x 、 E_y の振幅を A_x 、 A_y 、それらの初期位相 δ_1, δ_2 の間の位相差を δ とする。

ストークス・パラメータは s_0 から s_3 の四つの要素で

Fig. 1. Relationship states of polarization of input and output beam.

以下のように表すことができる。

$$\begin{aligned}
 s_0 &= \langle E_x E_x^* + E_y E_y^* \rangle = A_x^2 + A_y^2 \\
 s_1 &= \langle E_x E_x^* - E_y E_y^* \rangle = A_x^2 - A_y^2 \\
 s_2 &= \langle E_x E_y + E_x^* E_y^* \rangle = 2A_x A_y \cos \delta \\
 s_3 &= i \langle E_x E_y - E_x^* E_y^* \rangle = 2A_x A_y \sin \delta
 \end{aligned} \quad (1)$$

このストークス・パラメータの各成分は、 s_0 成分は光強度、 s_1 成分は水平直線偏光成分、 s_2 成分は 45° 直線偏光成分、 s_3 成分は右円偏光成分である。

Fig. 1 に示すような透過、または反射する線形光学素子を考える。入射光と、光学素子からの出射光の偏光状態の変化は、ストークス・パラメータで 1 行 4 列 4 要素からなる S 、 S' で関係づけられるので、

$$S' = M \cdot S$$

$$\begin{bmatrix} s'_0 \\ s'_1 \\ s'_2 \\ s'_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} s_0 \\ s_1 \\ s_2 \\ s_3 \end{bmatrix}, \quad (2)$$

と表される光学素子は 4 行 4 列のマトリックス、つまりミューラー行列 M で表わすことができる。

入射光が N 個の光学素子 M_N を透過する場合、光検

出器で検出される光強度は、各光学素子とストークス・パラメータ S' の掛け合わせにより求めることができる。また、ミュラー行列はすでに光強度を扱っているので要素 s_0 成分が光強度となる。N 個の光学素子 $M_1 \sim M_N$ を光が透過するとき、入出射光のストークス・パラメータとミュラー行列の関係は

$$\begin{aligned} S' &= M_N [\cdots [M_2 \cdot [M_1 \cdot S]]] \\ &= M_N \cdots M_2 M_1 \cdot S \end{aligned} \quad (3)$$

となる。

ミュラー行列の 16 個の要素は、各偏光特性である二色性（複吸収）、円二色性（円複吸収）、複屈折性（直線リターダンス）、旋光性（円リターダンス）として特定の要素に現れるので、次式のように色分けすることができる。

$$M = \begin{bmatrix} \text{diat.} & \text{diat.} & \text{diat.} & \text{diat.} \\ m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \\ \text{cir. diat.} & \text{birefr.} & \text{birefr.} & \text{birefr.} \end{bmatrix} \quad (4)$$

ミュラー行列は様々な偏光パラメータが混在したサンプルを評価するのに有効であるが、実際には、求められたミュラー行列から混在した偏光特性を理解することは容易でない。実際は、求めたミュラー行列から混在した各偏光特性を分離し、個々の偏光特性を導出する必要がある。

ミュラー行列 M は偏光解消性を示す行列 M_Δ 、（直線・円）複屈折成分（retardance）を示す行列 M_R 、および、（直線・円）複吸収成分（diattenuation）を示す行列 M_D を用いて、

$$M = M_\Delta M_R M_D \quad (5)$$

と偏光分離することができる^{4,5)}。さらに、これらを直線複屈折と円複屈折など各偏光パラメータに分離する。

3. 二重回転位相型分光ミュラー行列偏光計

Fig. 2 は Azzam により提案された二重回転位相型ミュラー行列偏光計の光学系である⁷⁾。光源からの光は偏光子 P を経て、サンプル M の両側に設置された 2 枚の回転 1/4 波長板 Q1, Q2 を透過後、検光子 A を通って検出器で光強度として検出される。2 枚の 1/4 波長板を 1:5 の角度比で回転させると、回転により変調された光強度は、入射光と各光学素子のストークス・パラメータとミュラー行列から、

$$I = \frac{1}{4} I_0 \left[m_{00} + \frac{1}{2} m_{01} + \frac{1}{2} m_{10} + \frac{1}{4} m_{11} + \left(m_{03} + \frac{1}{2} m_{13} \right) \sin 2\theta \right]$$

Fig. 2. Dual rotating Mueller matrix polarimeter.

$$\begin{aligned} & + \left(\frac{1}{2} m_{01} + \frac{1}{4} m_{11} \right) \cos 4\theta + \left(\frac{1}{2} m_{02} + \frac{1}{4} m_{12} \right) \sin 4\theta \\ & - \frac{1}{4} m_{32} \cos 6\theta - \frac{1}{4} m_{31} \sin 6\theta - \frac{1}{2} m_{33} \cos 8\theta \\ & + \left(-m_{30} - \frac{1}{2} m_{31} \right) \sin 10\theta + \frac{1}{2} m_{33} \cos 12\theta \\ & + \frac{1}{4} m_{32} \cos 14\theta - \frac{1}{4} m_{31} \sin 14\theta + \left(\frac{1}{8} m_{11} + \frac{1}{8} m_{22} \right) \cos 16\theta \\ & + \left(-\frac{1}{8} m_{12} + \frac{1}{8} m_{21} \right) \sin 16\theta + \frac{1}{4} m_{23} \cos 18\theta - \frac{1}{4} m_{13} \sin 18\theta \\ & + \left(\frac{1}{2} m_{10} + \frac{1}{4} m_{11} \right) \cos 20\theta + \left(\frac{1}{2} m_{20} + \frac{1}{4} m_{21} \right) \sin 20\theta \\ & - \frac{1}{4} m_{23} \cos 22\theta + \frac{1}{4} m_{13} \sin 22\theta \\ & + \left(\frac{1}{8} m_{11} - \frac{1}{8} m_{22} \right) \cos 24\theta + \left(\frac{1}{8} m_{12} + \frac{1}{8} m_{21} \right) \sin 24\theta \} \\ & = \frac{1}{4} I_0 \left[a_0(m_{ij}) + \sum_{n=1}^{12} \{ a_n(m_{ij}) \cos 2n\theta + b_n(m_{ij}) \sin 2n\theta \} \right] \end{aligned} \quad (6)$$

となる。

ここで、 m_{ij} はミュラー行列の各要素、 a_0 , a_n , b_n は 1/4 波長板の回転角 θ に対するフーリエ振幅である。（ここでは光強度の $n\omega$ 成分の振幅を $a_n \cos(n\omega)$ 成分、 $b_n \sin(n\omega)$ 成分を a_n , b_n としている。）

Fig. 2 において二つの 1/4 波長板の主軸方位および複屈折位相差の誤差は、ミュラー行列の主たる誤差要因となる。Chipman, Goldstein の手法は、このキャリブレーション法として有名である^{4,8)}。2 枚の 1/4 波長板の複屈折位相差の誤差および方位誤差を測定サンプルのない状態で計測したフーリエ級数よりあらかじめ誤差の値を算出することで、これらの誤差を補正した高精度のミュラー行列を求めることができる。

Fig. 3 は、反射型二重回転位相型偏光計である⁹⁾。光源にハロゲンランプ、検出器にグリズムによるライン型分光器を用いることで分光ミュラー行列計測を求めることができる。また、アーム型のため入射角を鉛直から 30° から 90° で稼働できる。入射角 90° のとき透過型偏光計となり、キャリブレーションをすることができる。

Fig. 4 はワイヤーグリッド偏光子の波長 460~680 nm における光の分光ミュラー行列である。 m_{00} から m_{33} まです横軸を波長, 縦軸をミュラー行列の値として ± 1 として 16 個のグラフで表している。サンプルは, 2 色性の偏光子なので理論値のミュラー行列は左上の四つの要素

Fig. 3. (color online). Photograph of dual rotating Mueller matrix polarimeter.

Fig. 4. (color online). Experimental result of spectroscopic Mueller matrix of a wire grid polarizer.

が 1 となりあとは 0 となる。実測値と数値解析値はよく一致した結果となった。

4. 液晶位相変調素子による分光ミュラー行列偏光計

Fig. 5 は液晶位相変調器 (LC 変調器) を用いた分光ミュラー行列偏光計である¹⁰⁾。LC 変調器は, 主軸方位の異なった 2 枚を組み合わせることによって回転位相子と同じ働きができる。偏光変調器である液晶リターダ LCR1, LCR2 の複屈折位相差 δ_1, δ_2 と, サンプル M を透過した偏光解析器である液晶リターダ LCR3, LCR4 の複屈折位相差 δ_3, δ_4 によって位相変調され, 検光子 A によって光強度として検出される。LC 偏光変調器と LC 解析器を $\delta : 5\delta$ の関係で位相変調したときの, 位相 δ に対する光強度のフーリエ級数 a_0, a_n, b_n からミュラー行列の各要素を求めることができる。ミュラー行列偏光計の誤差要因は, 液晶リターダ 1~4 と主軸方位誤差である。ここでもサンプルのない状態でミュラー行列から校正することが可能である。

実際のミュラー行列の各要素の精度検定の結果, 標準偏差は 0.0008 となった。**Fig. 6** は 1/4 波長の位相差フィルムを計測した結果である。**Fig. 6 (a)** はミュラー行列

(a) Spectroscopic Mueller matrix (b) Retardance dispersion

Fig. 6. (color online). Experimental result of a quarter wave film.

Fig. 5. Spectroscopic Mueller matrix polarimeter by liquid crystal phase modulators.

Fig. 7. (color online). Spectroscopic Mueller matrix polarimeter by channeled spectrum.

を表す。行列の各要素の横軸は、波長 450～650 nm に対するミュラー行列の大きさを ± 1 で表している。Fig. 6 (b) はミュラー行列の結果からデコンポジションして複屈折位相差の波長特性を表したものである。実線は分光複屈折計測計による計測結果であり、丸印が本手法による計測結果である。両者はよく一致した。

5. チャネルドスペクトルによる分光ミュラー行列偏光計

偏光子と検光子をクロス・ニコル（または、平行ニコル）に設置し、その間にサンプルを挿入する。ここに白色照明することで波長によって位相差が異なって発生する。ここで観察できる干渉色がチャネルドスペクトルである¹¹⁻¹³⁾。チャネルドスペクトルの光強度は、波数 k に対して分光強度が正弦状に変化する。ただし、サンプルの複屈折位相差が波長依存性をもつため空間周波数は一定にならない。そこで、波長依存性の外部の位相子によってキャリア周波数を与える。この空間周波数の振幅と位相を利用することで部分ミュラー行列を求めることができる。Fig. 7 は、サンプルを偏光子 P、位相子 R1 の偏光変調器と位相子 R2、検光子 A の偏光解析器の関係を示す。ここで、Fig. 7 (a)～(d) は、各光学素子の角度を変化させたときのチャネルドスペクトルである、位

相子 R1 と R2 の位相差を高次でかつ波長の整数倍にしておくチャネルドスペクトルは、位相差の和差の空間周波数の混合されたものとなる。したがって、それぞれのショットからはミュラー行列 16 個の要素のうち図中の丸で囲まれた 9 個、つまり、部分ミュラー行列が求まる。完全なミュラー行列を求めるためには、リターダおよび偏光子の主軸方位を変えた四つのショットから求めることができる¹⁴⁾。これによって、最低限四つの組み合わせで分光完全ミュラー行列が求められる。Fig. 8 は、Fig. 7 の光学系で液晶用位相差フィルム（ $1/4$ 波長板）の分光ミュラー行列を計測した結果である。これから、4 ショットで分光ミュラー行列が計測可能であることがわかる。

さらに、外部からの位相子のキャリア周波数を重複しないように設定、サンプルの前後二つずつのキャリアリターダにより、スナップショット分光ミュラー行列偏光計測が可能となる¹⁵⁾。これらのスペクトルの組み合わせは、Fig. 7 の場合に比べてかなり複雑になる。1, 2, 5, 10 倍のリターダを用意して、18 次まで得られるチャネルドスペクトルの 0 次までのフーリエ級数を使って 16 個すべてのミュラー行列を求めることができる。さらに、ホログラムと 2 次元 CCD カメラを使った 2 次元分光カメラと組み合わせることでスナップショット 2 次

Fig. 8. (color online). Experimental result of spectroscopic Mueller matrix of a quarter wave retardance film.

元分光ミュラー行列偏光計が可能となる。

6. ま と め

光学技術の高度化とともに、偏光の問題について盛んに議論されている。ストークス・パラメータとミュラー行列は、インコヒーレント光で部分偏光や非偏光で扱うことができるため、今後ますますの発展が期待できる。分光ミュラー行列計測法は、いくつか代表的な手法が提案され実用化もされている。今回紹介しきれなかったが、光弾性変調器を用いた手法は高精度化が期待できる。一般に、偏光素子は製造や波長依存性などの要因で理論どおりにならないので、キャリブレーションが必要である。また、計測されたミュラー行列は偏光分離によって、必要な偏光成分等にデコンボジションする必要がある。

ある。これらの過程を経て、複屈折、旋光性、二色性、円二色性や偏光解消に偏光分離することができる。点計測による手法がすでに製品化されて成功しているのに対して、2次元分光ミュラー行列測定はまだ有望な装置がない。2次元化においては空間分解能をどうするのかなどまだまだ解決されなければならない課題がある。

今後、分光ミュラー行列計測がさらに技術的に発展していくことが期待される。

文 献

- 1) R.C. Jones : J. Opt. Soc. Am. **31**, 488 (1941).
- 2) R.M.A. Azzam and N.M. Bashara : "Ellipsometry and Polarized Light" (North-Holland, 1987).
- 3) 藤原裕之 : "分光エリプソメトリー" (丸善, 2003).
- 4) D. Goldstein : "Polarized light 2nd Ed." (Marcel Dekker, 2003).
- 5) S.Y. Lu and R.A. Chipman : J. Opt. Soc. Am. A **13**, 1106 (1996).
- 6) P.S. Theocaris and E.E. Gdoutos : "Matrix theory of photoelasticity" (Springer, 1979).
- 7) R.M.A. Azzam : Opt. Lett. **2**, 148 (1978).
- 8) D. Goldstein and R. Chipman : J. Opt. Soc. Am. **7**, 693 (1990).
- 9) Y. Otani, T. Kuwagaito and Y. Mizutani : Proc. SPIE **7063**, 70630Y (2008).
- 10) Y. Otani and M. Chujo : Proc. SPIE **7461**, 7461Q (2009).
- 11) J.W. Ellis and L. Glatt : J. Opt. Soc. Am. **40**, 141 (1950).
- 12) H.G. Jerrard : J. Opt. Soc. Am. **42**, 159 (1952).
- 13) K. Oka and T. Kato : Opt. Lett. **24**, 1475 (1999).
- 14) Y. Otani, T. Wakayama and K. Oka : Opt. Commun. **281**, 5725 (2008).
- 15) N. Hagen, K. Oka and E.L. Dereniak : Opt. Lett. **32**, 2100 (2007).