

分光偏光変調を用いたミュラー行列測定

大谷 幸利*・若山 俊隆**

Spectroscopic Mueller Matrix Polarimeter

Yukitoshi OTANI* and Toshitaka WAKAYAMA**

A Mueller matrix polarimeter is powerful tool to all kinds of polarization parameters, such as linear birefringence, circular birefringence (rotation), linear diattenuation (dichroism), circular diattenuation (circular dichroism) and depolarization. It is required to measure in the various fields of nanotechnology, optical functional materials and biotechnology. This paper explores briefly history of Mueller matrix polarimeter. The basic concept of the channeled spectrum by spectral modulation and partial Mueller matrix polarimeter are examined. Finally, a spectroscopic Mueller matrix polarimeter acquired for four channeled spectra and a snapshot spectropolarimeter are discussed.

Key words: Mueller matrix, spectropolarimeter, channeled spectrum, retardance, diattenuation, depolarization

偏光問題は古くて新しい技術である。近年、多くの光応用工業製品に偏光が使われているだけでなく、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、さまざまな分野でキーワードとなっている。ここでは従来からの偏光パラメーターである複屈折、二色性や円二色性だけでなく、これらが混在し、偏光解消も加わった16個のパラメーターを議論する必要が出てきている。さらに、偏光は分光特性をもつ。空間分布まで考えると、膨大なるパラメーターの情報をとらえることが求められている。これだけの情報は、整理して考える必要がある。一般に偏光特性には、表1に示すように、光学素子を透過する際に生じる位相遅れ (retardation) に関する複屈折および旋光性、吸収率性 (diattenuation) に関する二色性および円二色性、さらに、偏光解消 (depolarization) がある。光の偏光状態からみると、位相遅れは直線偏光と円偏光で直線複屈折 (複屈折) と円複屈折 (旋光), 吸収性は直線複吸収 (linear diattenuation, 二色性) と円複吸収 (circular diattenuation, 円二色性)[†] に分類するとわかりやすい¹⁾。

偏光状態は電界 xy 成分の振幅と位相の4つのパラメ

ーターで表すことができる。一般に、4つのパラメーターからなるストークス・パラメーターや2つの要素を実部と虚部で表すジョーンズベクトルと、光学素子 (透過または反射したときの偏光素子) としてこれらのパラメーターの変換行列になる4×4のミュラー行列や2×2のジョーンズ行列で表せる。一般に完全偏光のみを取り扱う場合には、要素数の少ないジョーンズ行列の計算が容易である。一方、ストークス・パラメーターとミュラー行列は非偏光および偏光解消を扱うことができる。これからの光応用製品の評価には、ミュラー行列での取り扱いが重要である。

偏光素子のミュラー行列 M は、4行4列で、16個の要素は大まかに分けると、

$$M = \begin{bmatrix} m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{bmatrix} \quad (1)$$

二色性
旋光性

円二色性
複屈折性

と表すことができる。

*宇都宮大学オプティクス教育研究センター (〒321-8585 宇都宮市陽東7-1-2) E-mail: otani@cc.utsunomiya-u.ac.jp

**埼玉医科大学保健医療学部医用生体工学科 (〒350-1241 日高市山根 1397-1)

[†]diattenuation の用語は対応する日本語はないが、ここでは複屈折に対応して「複吸収」と表記する。

表1 偏光成分の関係.

	位相遅れ (retardance)	吸収率 (diattenuation)
(直交) 直線偏光成分	直線複屈折 (linear birefringence)	直線複吸収 (二色性) (linear diattenuation)
(左右) 円偏光成分	円複屈折 (旋光) (circular birefringence)	円複吸収 (円二色性) (circular diattenuation)
非偏光成分	偏光解消 (depolarization)	

各偏光特性である複吸収成分 M_D の項である二色性 (複吸収), 円二色性 (円複吸収), およびターダンス成分 M_R の項である複屈折性 (直線複屈折), 旋光性 (円複屈折) さらに偏光解消成分 M_A が混在している. これらの関係は Lu, Chipman のアルゴリズムにしたがって,

$$M = M_A M_R M_D \quad (2)$$

と分離できる²⁾.

以上のような背景をもつミュラー行列であるが, 本解説では材料やバイオ計測に有用なミュラー行列の波長依存性をワンショット計測する方法について述べる. ここでは, Jerrard や Ellis らによって提案された, 一对の偏光子の間に複屈折材料を挿入し分光したときに生じるチャネルドスペクトルが有用である^{3,4)}. 偏光計測におけるチャネルドスペクトルの先駆的な利用に, 岡による分光ストークス偏光計⁵⁾がある. その後の複屈折分散計測⁴⁾の発展系として, ミュラー行列偏光計^{6,7)}が報告されている. 本解説ではミュラー行列偏光計の背景について述べた後に, 代表的な2つの分光ミュラー行列偏光計の応用に関して述べる.

1. ミュラー行列偏光計

ミュラー行列 M は4行4列であるので, 図1に示すように入射光 S_{in} と出射光 S_{out} のストークス・パラメーターと偏光変調光学素子 P と検光変調光学素子 A を用意して外部からの変調を与えることで求めることができる.

ストークス・パラメーターとミュラー行列の関係は,

$$S_{out} = A \cdot M \cdot P \cdot S_{in}$$

$$\begin{bmatrix} S_0' \\ S_1' \\ S_2' \\ S_3' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_{00} & a_{01} & a_{02} & a_{03} \\ a_{10} & a_{11} & a_{12} & a_{13} \\ a_{20} & a_{21} & a_{22} & a_{23} \\ a_{30} & a_{31} & a_{32} & a_{33} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} p_{00} & p_{01} & p_{02} & p_{03} \\ p_{10} & p_{11} & p_{12} & p_{13} \\ p_{20} & p_{21} & p_{22} & p_{23} \\ p_{30} & p_{31} & p_{32} & p_{33} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} \quad (3)$$

となる.

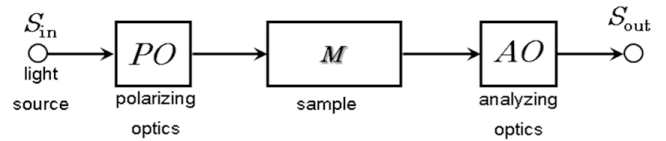


図1 偏光光学系と検光光学系によるミュラー行列計測.

検出される光強度はストークス・パラメーターの要素 s'_i 成分である. 未知数は16個のため, 偏光変調器 P によって4通りの異なる偏光を入射させる. それぞれの入射光に対して検光変調器 A によって4通りの偏光変調を加えて光強度を検出する. 逆行列を解くことによって16個のミュラー行列要素を求めることができる.

たとえば, 入射光を $0, 45, 90^\circ$ 直線偏光や円偏光と変化させて, ストークス偏光計でサンプルからの出射光の偏光状態を計測することでも, ミュラー行列を求めることができる.

図2に, 代表的な変調方式の違いによるミュラー行列計測を示す. 図2 (a) は Azzam によって提案された二重回転位相子法である⁸⁾. サンプル前後の四分の一波長板の回転角度比を $1:5$ で回転させたときの光強度を検出すると, 図のような多周期が混在した信号になる. これをフーリエ変換したときのフーリエ振幅から, ミュラー行列の各要素を求めることができる. ここでは, 光学素子の方位誤差や位相子の位相誤差をもつ. Chipman らは, 高精度化のためのキャリブレーション法を提案している⁹⁾. われわれのグループは分光ミュラー行列の高速計測を目指して, グリズムを用いた分光ライン型検出ミュラー行列偏光計を提案してきた¹⁰⁾.

しかしながら, 回転位相子法は機械的な駆動を伴うために, 実時間で計測ができないという欠点があった. そこで, 図2 (b) のように偏光変調器に電気光学素子 (EOM) を $41.0, 0.3, 1.0, 10.0$ kHz に正弦変調させた4セットを用いて周波数を検出して, 機械的な駆動をもたない実時間計測システムを達成している¹¹⁾.

さらに, 図2 (a) (b) において四分の一波長板や EOM の位相変調量は波長に依存する. したがって, 材料やバイ

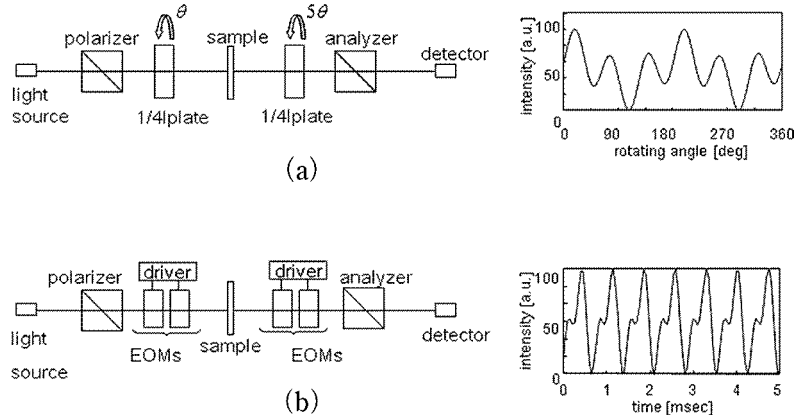


図2 代表的な変調方式の違いによるミュラー行列計測。(a) 回転補償子法, (b) 電気光学変調法。

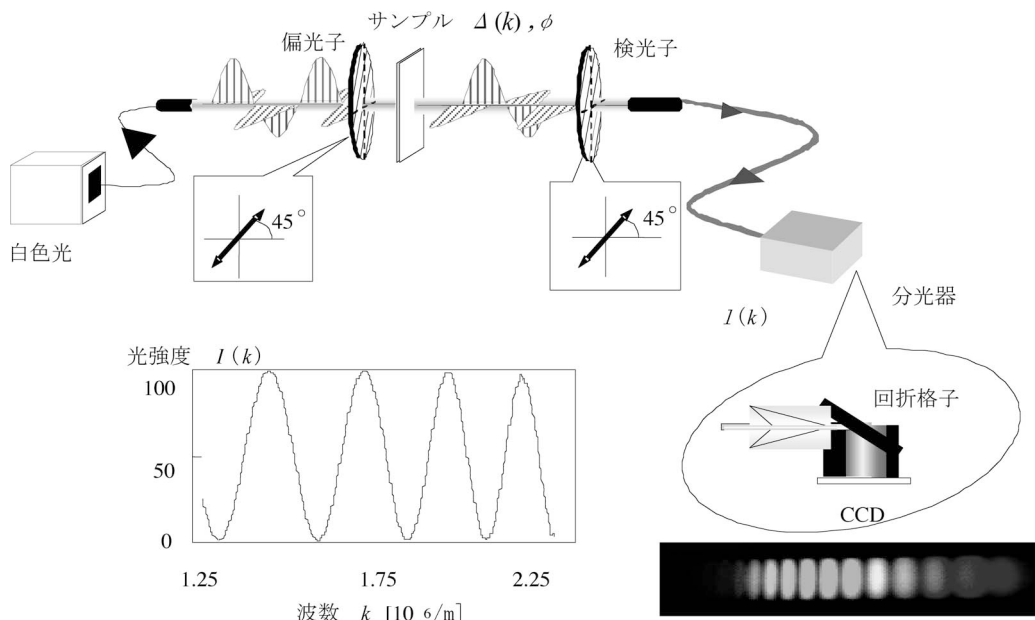


図3 分光変調によるチャネルスペクトル。

オ計測に有用な分光特性を得るためには、波長ごとにキャリブレーションを行う必要があると同時に、分光情報を一度にとらえるのは困難であった。

2. 分光変調によるミュラー行列計測

2.1 分光変調法

図3に示すように、チャネルスペクトルは1対の偏光子をクロス・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したときに見える干渉色のことである。

このときの光強度は、

$$I(k) = A(k) + B(k) \cdot \cos^2 2\phi \cdot \cos \Delta(k) \quad (4)$$

となり、位相 $\Delta(k)$ は

$$\Delta(k) = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \Delta n_{(\lambda)} \cdot d = 2\pi \cdot \Delta n_{(\lambda)} \cdot d \cdot k \quad (5)$$

と表すことができる。

分光器で検出されるチャネルスペクトルの光強度は、図3で示すように、波数 k に対して分光強度が正弦状に変化する。ただし、波数 k 軸に対してサンプルがもつ複屈折位相差の波長依存性の影響により一定でない。そこで、空間周波数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。

ミュラー行列は16個の要素からなるので、基本的には図2のようになんらかの外部変調を与える必要がある。図4に示すように、2つの次数の異なる高次リターダーを用意したデュアルリターダーを用いると、部分ミュラー行列を

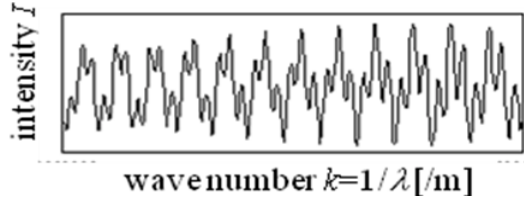
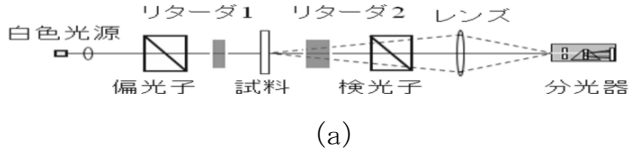


図4 デュアルリターダーによる分光変調偏光計による部分ミューラー行列計測. (a) デュアルリターダーによる偏光計, (b) チャネルドスペクトル.

求めることができる. 白色光源からの光 S_{in} は偏光子 $1P$ とリターダー $1R_1$ を透過する. さらに, 試料 M を透過した後に, リターダー $2R_2$ と検光子 A を透過することで偏光変調を与えられる. 分光器によってチャネルドスペクトルの光強度 S_{out} が検出される. 偏光子と検光子の主軸方位はそれぞれ 0° と 45° , そして, リターダー 1 は方位 45° , リターダー 2 は 0° に設置する. リターダーの複屈折位相差をそれぞれ δ_1 および δ_2 とすると, 各偏光素子のストークス・パラメーターとミューラー行列の関係から, 分光器で検出されるチャネルドスペクトルの光強度 $I(k)$ は

$$S_{out} = A \cdot R_2 \cdot M \cdot R_1 \cdot P \cdot S_{in}$$

$$\begin{bmatrix} s_0' \\ s_1' \\ s_2' \\ s_3' \end{bmatrix} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 \cos \delta_2(\lambda) & 0 & -\sin \delta_2(\lambda) \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 \sin \delta_2(\lambda) & 0 & \cos \delta_2(\lambda) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos \delta_1(\lambda) & \sin \delta_1(\lambda) \\ 0 & 0 & -\sin \delta_1(\lambda) & \cos \delta_1(\lambda) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} s_0 \\ s_1 \\ s_2 \\ s_3 \end{bmatrix} \quad (6)$$

より,

$$I(k) = \frac{1}{4} + \frac{1}{4} \sqrt{(m_{21} + m_{33})^2 + (m_{23} - m_{31})^2}$$

$$\cos \left(\delta_1(k) - \delta_2(k) - \tan^{-1} \frac{m_{21} + m_{33}}{m_{23} - m_{31}} \right) + \frac{1}{4} \sqrt{(m_{21} - m_{33})^2 + (m_{23} + m_{31})^2} \cos \left(\delta_1(k) + \delta_2(k) - \tan^{-1} \frac{m_{21} - m_{33}}{m_{23} + m_{31}} \right) \quad (7)$$

となる.

これはチャネルドスペクトルを波数空間でフーリエ変換したときの振幅成分と位相成分から得られる. したがって, 式 (7) から, 16 個のミューラー行列要素の中で m_{21} , m_{23} , m_{31} , m_{33} の成分を求めることができる. この部分ミューラー行列ならば, 複屈折位相差と主軸方向を求めるには十分である.

参考までに, 図 5 に四分の一波長板の解析の様子を示す. 図 5 (a) のように 1 ショット目に得られるチャネルドスペクトルである. これをフーリエ変換すると図 5 (b) に示すようなスペクトルが得られる. この振幅と位相から求められる部分ミューラー行列が図 5 (c) のようになり, 複屈折の波長依存性を求めることができている.

2.2 4 ショット分光ミューラー行列偏光計

図 6 に示すように完全ミューラー行列を求めるためには, リターダーおよび偏光子の主軸方位を変えることが重要である. これによって部分ミューラー行列の検出できる要素を変化させることができる⁷⁾. これによって, 最低限 4 つの組み合わせで分光完全ミューラー行列が求められる. 入射光 S_{in} と出射光 S_{out} の関係は, 主軸方位が θ_1 の偏光子 P と, 主軸方位が θ_4 の検光子 A , 主軸方位 θ_2 , 位相差 $\Delta_1(k)$ のリターダー $1R_1$ および主軸方位 θ_3 , 位相差 $\Delta_2(k)$ のリターダー $2R_2$ を透過する.

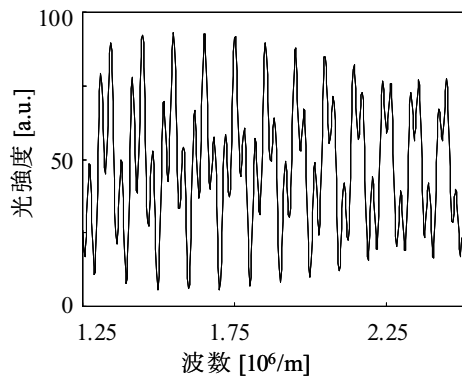
これらの関係は,

$$S_{out} = A(\theta_4) \cdot R_2(\Delta_2(k), \theta_3) \cdot M \cdot R_1(\Delta_1(k), \theta_2) \cdot P(\theta_1) \cdot S_{in} \quad (8)$$

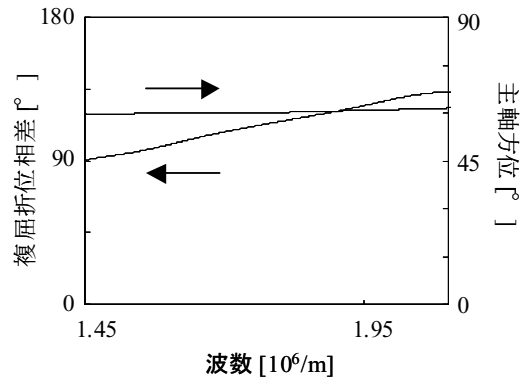
(ただし, k は波数) となる.

$\theta_1 \sim \theta_4$ までの関係を図 6 のようにすると, 式 (8) は下記のように計算できる.

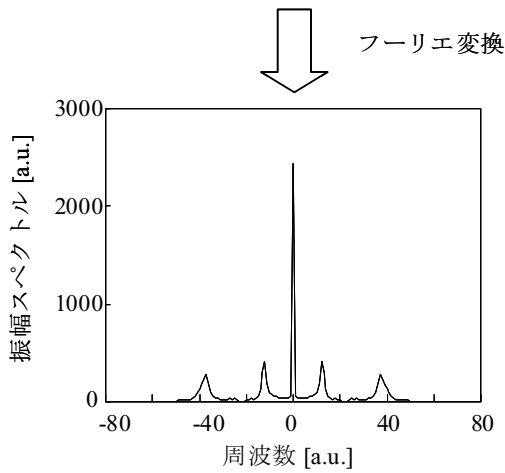
$$I_N(k) = 1/8 [a_{N0}(k) + a_{N1}(k) \cos \delta_1(k) + b_{N1}(k) \sin \delta_1(k) + a_{N-}(k) \cos \{\delta_1(k) - \delta_2(k)\} + b_{N-}(k) \sin \{\delta_1(k) - \delta_2(k)\} + a_{N2}(k) \cos \{\delta_2(k)\} + b_{N2}(k) \sin \{\delta_2(k)\} + a_{N+}(k) \cos \{\delta_1(k) + \delta_2(k)\} + b_{N+}(k) \sin \{\delta_1(k) + \delta_2(k)\}] \quad (9)$$



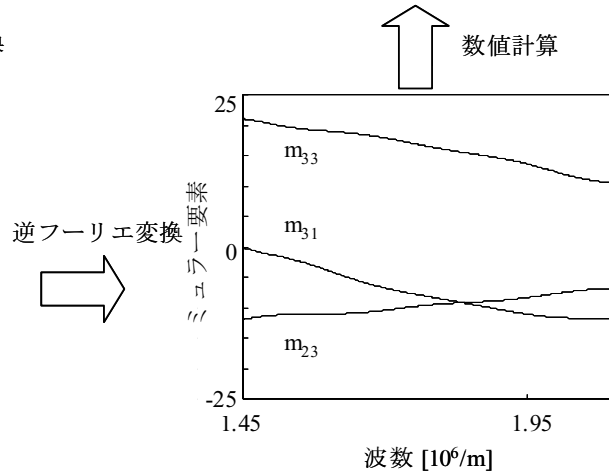
(a) チャネルスペクトル



(d) 複屈折分散や主軸方位, 旋光分散



(b) フーリエスペクトル



(c) ミューラー要素

図5 高速フーリエ変換法によるチャネルスペクトルの解析.

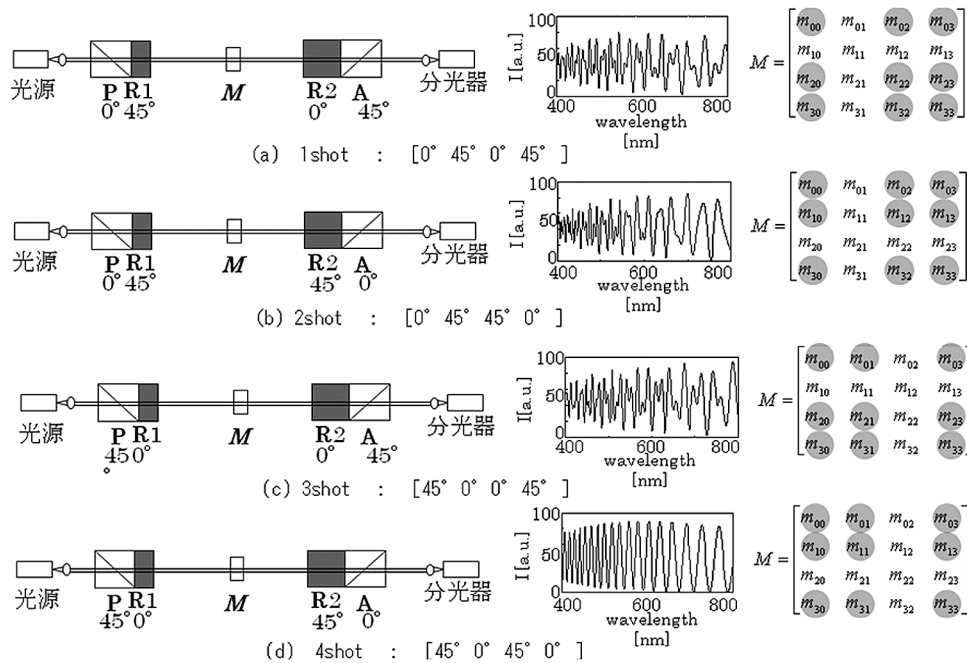


図6 4ショットにおけるミューラー行列計測法.

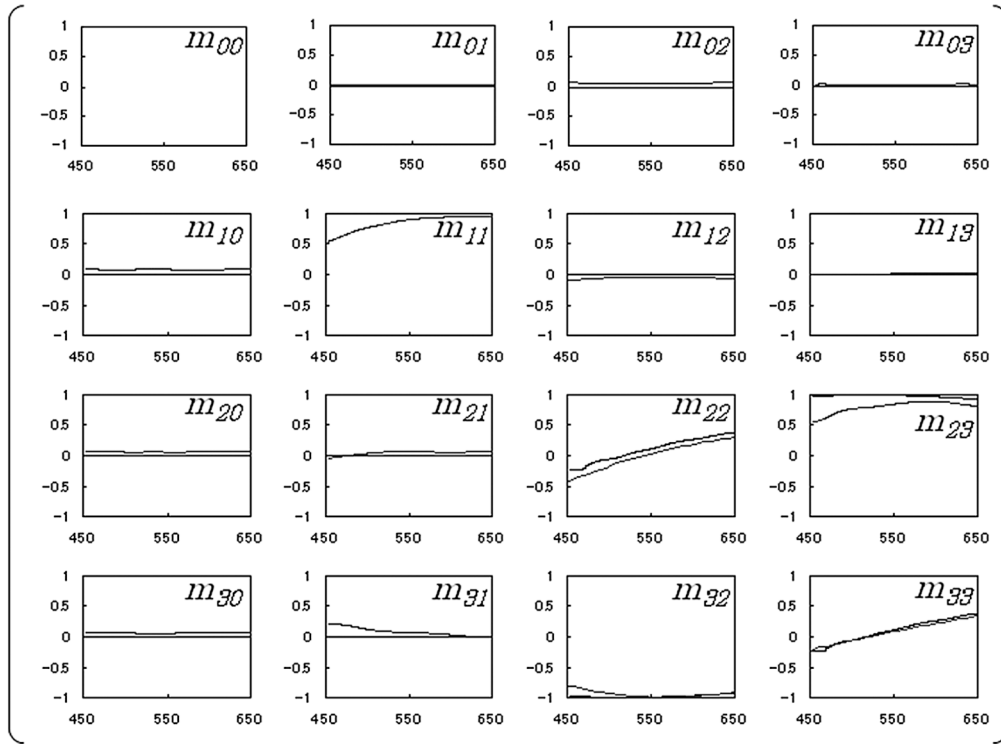


図7 四分の一波長フィルムのミュラー行列計測結果.

ここで, N は整数, $a_{N0}(k)$, $a_{N1}(k)$, $b_{N1}(k)$, $a_{N-}(k)$, $b_{N-}(k)$, $a_{N2}(k)$, $b_{N2}(k)$, $a_{N+}(k)$, $b_{N+}(k)$ はフーリエ級数であり,

$$\begin{aligned}
 a_{10}(k) &= a_{20}(k) = a_{30}(k) = a_{40}(k) = 2m_{00}(k), \\
 a_{11}(k) &= a_{21}(k) = 2m_{01}(k), & b_{11}(k) &= b_{21}(k) = 2m_{03}(k), \\
 a_{31}(k) &= a_{41}(k) = 2m_{02}(k), & b_{31}(k) &= b_{41}(k) = -2m_{03}(k), \\
 a_{1-}(k) &= m_{21}(k) + m_{33}(k), & a_{2-}(k) &= m_{11}(k) - m_{33}(k), \\
 a_{3-}(k) &= m_{12}(k) + m_{33}(k), & a_{4-}(k) &= m_{22}(k) - m_{33}(k), \\
 b_{1-}(k) &= m_{31}(k) - m_{31}(k), & b_{2-}(k) &= m_{13}(k) + m_{31}(k), \\
 b_{3-}(k) &= m_{32}(k) - m_{13}(k), & b_{4-}(k) &= -(m_{23}(k) + m_{32}(k)), \\
 a_{12}(k) &= a_{42}(k) = 2m_{20}(k), & a_{22}(k) &= a_{32}(k) = 2m_{10}(k), \\
 b_{12}(k) &= b_{42}(k) = 2m_{30}(k), & b_{22}(k) &= b_{32}(k) = -2m_{30}(k), \\
 a_{1+}(k) &= m_{21}(k) - m_{33}(k), & a_{2+}(k) &= m_{11}(k) + m_{33}(k), \\
 a_{3+}(k) &= m_{12}(k) - m_{33}(k), & a_{4+}(k) &= m_{22}(k) + m_{33}(k), \\
 b_{1+}(k) &= m_{23}(k) + m_{31}(k), & b_{2+}(k) &= m_{13}(k) - m_{31}(k), \\
 b_{3+}(k) &= -(m_{13}(k) + m_{32}(k)), & b_{4+}(k) &= m_{32}(k) - m_{23}(k)
 \end{aligned}
 \tag{10}$$

としてミュラー行列の要素 $m_{00} \sim m_{33}$ と関連づけることができる.

図7はサンプルを四分の一波長フィルムとして分光ミュラー行列を求めた結果である. 結果は一般の行列表示を図示したもので, 各図がミュラー行列の要素に対応する. 各々の要素は波長 450~650 nm に対する大きさを ± 1 で規格化して表示している. 理想的な四分の一波長板は,

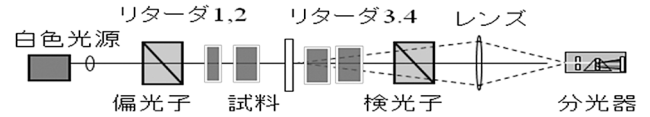


図8 ワンショット分光ミュラー行列偏光計.

$$M = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos\Delta(\lambda) & \sin\Delta(\lambda) \\ 0 & 0 & -\sin\Delta(\lambda) & \cos\Delta(\lambda) \end{bmatrix} \tag{11}$$

となる.

ここでは, $m_{22} \sim m_{33}$ が複屈折を示すが, 複屈折の波長依存性を示している. また, m_{11} 成分の波長が短くなると 1 より小さくなっている傾向は, 紫外線に近づくにつれて吸収されていることを示す.

2.3 ワンショット分光ミュラー行列偏光計

図2(b)に示したように, 偏光変調器と偏光解析器で4つの変調ユニットがあればワンショットでリアルタイムに計測が可能である. 図8に示すように, Hagenらはサンプルの前後2つずつ, 計4つのキャリアリターダーを用意してスナップショット分光ミュラー行列偏光計を提案している⁶⁾. これらのスペクトルの組み合わせは, 図6の場合に比べてかなり複雑になる. 1, 2, 5, 10倍のリターダーを用意して, 18次まで得られるチャネルドスペクトルの

ゼロ次までのフーリエ級数を使って16個すべてのミューラー行列を求めることを可能としている。

さらに、彼らのグループはホログラムと二次元 CCD カメラを使った二次元分光カメラを開発しており、これらと検出器として導入することで二次元分光ミューラー行列偏光計が可能となり大変興味深い。

ミューラー行列は光学材料そのものがもつ偏光特性、つまり、複屈折、旋光性、二色性、円二色性および偏光解消の物理量を一度に行列として取り扱うことができる。本解説では、分光ミューラー行列偏光計について、ミューラー計測の簡単な歴史からスタートして、分光偏光変調および部分ミューラー行列偏光計法を紹介してきた。求めるパラメータが増えてくるほど、重畳される空間周波数が増えて帯域が狭まってくる。また、装置も複雑になるだけでなく、精度を向上するためにコストが要求される。現場ライン導入など実用化の面から考えると、これらの共通するキーワードである分光、実時間計測、分布計測を満足するシステムを開発できる可能性を秘めている。光学素子をはじめ、さらなる技術の向上が求められる。

今後、さまざまな条件下での偏光解消の問題がますます重要性をもってくると思うが、その際に力を発揮できるミューラー行列計測が重要度をますます増すものと考えている。

文 献

- 1) R. A. Chipman: "Polarimetry," *Handbook of Optics*, Vol. 2 (McGraw-Hill, 1994) pp. 22.1-22.37.
- 2) S. Yau Lu and R. A. Chipman: "Interpretation of Mueller matrices based on polar decomposition," *J. Opt. Soc. Am. A*, **13** (1996) 1106-1113.
- 3) J. W. Ellis and L. Glatt: "Channeled infra-red spectra produced by birefringent crystals," *J. Opt. Soc. Am.*, **40** (1950) 141-142.
- 4) H. G. Jerrard: "The calibration of quarter-wave plates," *J. Opt. Soc. Am.*, **42** (1952) 159-165.
- 5) K. Oka and T. Kato: "Spectroscopic polarimetry with a channeled spectrum," *Opt. Lett.*, **24** (1999) 1475-1477.
- 6) N. Hagen, K. Oka and E. L. Dereniak: "Snapshot Mueller matrix spectropolarimeter," *Opt. Lett.*, **32** (2007) 2100-2102.
- 7) Y. Otani, T. Wakayama and K. Oka: "Spectroscopic Mueller matrix polarimeter using four-channeled spectra," *Opt. Commun.*, **281** (2008) 5725-5730.
- 8) R. M. A. Azzam: "Photopolarimetric measurement of the Mueller matrix by Fourier analysis of a single detected signal," *Opt. Lett.*, **2** (1978) 148-150.
- 9) D. Goldstein and R. Chipman: "Error analysis of a Mueller matrix polarimeter," *J. Opt. Soc. Am. A*, **7** (1990) 693-700.
- 10) Y. Otani, T. Kuwagaito and Y. Mizutani: "Surface profile detection with nanostructures using a Mueller matrix polarimeter," *Proc. SPIE*, **7063** (2008) 70630Y.
- 11) 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.
- 12) T. Wakayama, Y. Otani and N. Umeda: "Real-time measurement for birefringence dispersion using double retarders," *Proc. SPIE*, **5888** (2005) 55-60.

(2010年5月31日受理)