

平成 30 年 5 月 31 日現在

機関番号：13102

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H05523

研究課題名(和文) 光反応性液晶を媒介としたベクトルホログラフィによるテラヘルツ偏波の時空間制御

研究課題名(英文) Spatiotemporal control of polarized terahertz waves based on vector holography in photoreactive liquid crystals

研究代表者

佐々木 友之 (Sasaki, Tomoyuki)

長岡技術科学大学・工学研究科・准教授

研究者番号：90553090

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、液晶がテラヘルツ(THz)偏波の制御素子用材料として有用であることを示すとともに、光反応性液晶とベクトルホログラフィと呼ばれる偏光記録の手法を用いることでTHz偏波の時空間制御を実現することを目的に検討を行った。結果として、当初目的としていたTHz偏波の時空間変調技術の確立を研究期間内で達成するには至らなかったが、液晶が動的THz素子用材料として有用であること、並びに光反応性液晶によりTHz波の偏波を可視光の照射により制御できることが実証された。

研究成果の概要(英文)：We fabricated liquid crystal cells with transparent electrodes and investigated the transmittance spectra in the terahertz (THz) spectral range. The results demonstrated that liquid crystals are useful media for realizing active THz devices. We also investigated optically tunable THz polarization converters using dye-doped liquid crystals. The polarization conversion properties of the dye-doped liquid crystal cells could be controlled using the laser beam irradiation. The fact suggests that the polarization state of THz waves can be modulated spatiotemporally using liquid crystals and vector holography.

研究分野：応用光学

キーワード：テラヘルツ波 液晶 ベクトルホログラフィ

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ (THz) 波は、電波と光の境界領域にある電磁波(周波数でいうと 100 GHz から 10 THz 程度)であり、分子振動、分子間相互作用、固体の格子振動等が観測できるエネルギー領域にあることから、各種材料物性の探索に始まり、バイオや医療の分野に至るまで、様々な応用が期待されている[1]。また、マイクロ波と比べて周波数が高いことから大容量の情報伝送に適しており、通信の分野における周波数資源の枯渇問題を解決する可能性も秘めている。さらに、X 線に比べて波長が長いために低エネルギーであり、安全で低侵襲な非破壊検査技術へも応用が期待されている。20 年ほど前までは未踏の電磁波領域とされていたが、近年の精力的な研究によって、THz 帯における光源と検出器に関する技術基盤は整いつつある[2]。例えば、THz 帯での誘電分散が測定可能な THz 時間領域分光装置や、イメージング応用を見据えた 2 次元センサアレイ (THz カメラ) 等が既に市販されている。しかしながら、「発生」と「検出」の間を繋ぐ「伝搬の制御」に関する技術は依然として未開拓であり、このことは各種 THz 波応用の実用化を遅らせる要因となっている。

特に、外場により THz 波の偏波を高度に制御することを指向した研究は、本申請者の調べた限り行われていない。THz 帯における偏波変換素子としては、水晶波長板が市販されており、近年では金属平行板を用いた波長板も考案されているが[3]、これらは非常に高価であるとともに、アレイ化や外場制御が困難であるため、アクティブ素子への応用へは向かない。偏波は電磁波の有する重要な性質の一つであり、上述したような THz 波の応用を実現及び普及させるためには、THz 帯における高度な偏波制御技術の確立が必要不可欠である。

- [1] 深澤亮一, “分析・センシングのためのテラヘルツ波技術,” (日刊工業新聞, 2013).
- [2] A. Rostami, H. Rasooli, and H. Baghban, “Terahertz Technology,” (Springer, 2011).
- [3] M. Nagai, N. Mukai, Y. Minowa, M. Ashida, J. Takayanagi, and H. Ohtake, Opt. Lett. **39**, 146 (2014).

2. 研究の目的

上述のような背景のもと、本研究では、光反応性液晶材料を媒介とすることで、本申請者が独自に提案したベクトルホログラフィの手法により、THz 波の偏波を実時間で空間的に制御することを目的に実施する(図 1 参照)。

近年、THz 帯において 0.3 以上の複屈折を示す液晶の存在が報告された[4]。これは、THz 波長板に用いられている水晶と比べて 1 桁大きな値である。液晶は、THz 帯においても大きな複屈折と透過性を併せ持ち、外場に対する応答性も呈する稀有な材料といえ、液

晶を用いることで従来に無かった THz 偏波制御用アクティブ素子が早期に実現される可能性は極めて高い。

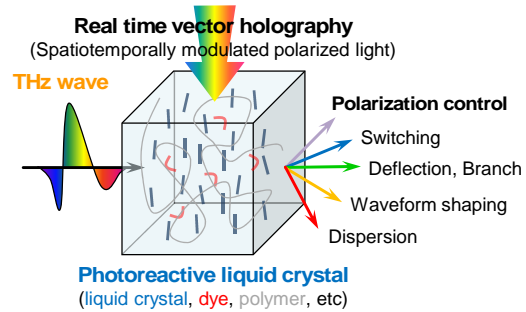


図 1 光反応性液晶を媒介とした THz 波伝搬の光制御

ディスプレイや空間光変調器などの可視域における液晶光学デバイスにおいては、分子配向制御のために外部電圧が印加され、そのためには、通常、ITO (Indium Tin Oxide) 電極が用いられる。しかしながら、ITO 膜は THz 帯において不透明であり、その使用は反射型素子等に限られることが予想される。一方で、本申請者は「偏光」を用いた液晶の配向制御に関する研究をこれまでに行ってきた。その過程で、互いにコヒーレントな偏光を光学的異方性媒質中で干渉させることで多次元偏光分布を形成する「3 次元ベクトルホログラフィ」と呼ばれる手法を独自に考案した。また、光反応性液晶材料中へこのホログラム記録を行うことで、その分子配向を実時間で空間的に制御できることを示した。電極構造を用いる必要のない偏光照射による配向制御は、THz 帯での液晶の応用上、極めて効果的である(図 2 参照)。

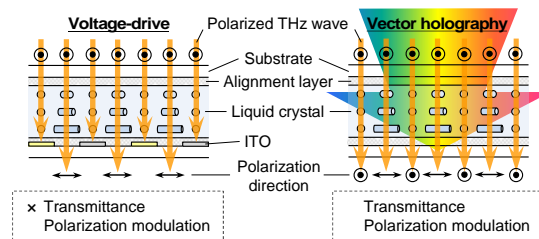


図 2 液晶を用いた外場による THz 偏波の制御 (左: ITO 電極を用いた電圧駆動、右: 可視域偏光を用いたベクトルホログラフィによる配向制御)

そこで、以下の達成目標を掲げ、本研究を計画した。

液晶の分子配向が THz 偏波の伝搬に及ぼす影響の解明(目的 1)

THz 帯で大きな複屈折(上述と同様に 10⁻¹ オーダー)を示す光反応性液晶材料の創出(目的 2)

光反応性液晶を媒体としたベクトルホログラフィによる THz 偏波の時空間変調技術の確立(目的 3)

[4] L. Wang, X. Lin, J. Wu, W. Hu, Z. Zheng, B. Jin, Y. Qin, and Y. Lu, *Opt. Mater. Express* **2**, 1314 (2012).

3. 研究の方法

本研究では、液晶が THz 波制御素子用材料として有用であることを実証するため、透明電極を介した液晶への電圧印加による THz 波の伝搬制御について検討を行った。透明電極用材料としては、幅広い周波数帯域で高い透過性を示すことが知られているグラフェンと、スピコートによって比較的容易に成膜可能な導電性高分子 poly(3,4-ethylenedioxythiophene)/poly(styrenesulfonate) (PEDOT/PSS) の二種類を試した。グラフェンを用いたものについては、単層グラフェンが転写された石英ガラス基板を用いて配向処理を施さずに液晶セルを作製し、その THz 帯での透過スペクトルを時間領域分光システムにより測定した。PEDOT/PSS 膜を用いたものについては、石英ガラス基板の上にスピコートした同膜にレーヨンによってラビング処理を施し、それにより揃い配向を有する液晶セルを作製し、その THz 帯での偏波変換特性を時間領域分光システムとワイヤグリッド検光子を組み合わせて観察した。印加する電圧はいずれも 1 kHz の矩形波とした。液晶には、室温でネマチック相を示す 4-pentyl-4'-cyanobiphenyl を用いた。

また、光反応性液晶を用いることで光による THz 波の伝搬制御が可能になることを実証するため、色素ドープ液晶の THz 帯における光学定数の測定を行った。その後、その色素ドープ液晶を用いて作製した揃い配向を有する液晶セルの THz 帯における偏光変換特性を、色素が吸収を有する波長域の可視光レーザーの照射下で観察した。色素には赤色の二色性色素である *N*-Ethyl-*N*-(2-hydroxyethyl)-4-(4-nitrophenylazo)aniline を、液晶には前述のネマチック液晶を用いた。

4. 研究成果

グラフェンを電極に用いた液晶セルに関する検討においては、単層グラフェンを転写した石英ガラス基板が THz 帯で比較的高い透過率を示したこと、及び作製した液晶セルが電圧応答性を示したこと、グラフェンが電圧制御型液晶 THz 素子用の透明電極として機能することが確認できた。また、特段の配向処理を施さずに作製したランダム配向の液晶セルを用いることで、THz 帯域における偏波に無依存な位相変調の実現されることが示された。電圧無印加時と十分に高い電圧を印加したときとで、THz 帯での透過率に大きな変化は見られなかったため、液晶のランダム配向に起因する散乱は THz 帯において小さいことも示唆された。これは、配向のドメインや欠陥のサイズが THz 波の波長

よりも小さいためと考えられた。これらの結果は既に査読付き学術論文にて詳しく報じている【T. Sasaki et al., *Opt. Lett.* **40**, 1544-1547 (2015)】。

PEDOT/PSS 膜を電極に用いた液晶セルに関する検討においては、ラビング処理を施した同膜が 10^{-4} J/m² 程度の比較的高い方位角アンカリングエネルギーを有し、液晶の配向膜として利用可能であることを明らかにした。また、同膜の直流に対する導電率、及び THz 帯における光学定数を測定した結果、その THz 帯での透明電極としての有用性も示すことができた。即ち、PEDOT/PSS 膜が液晶 THz 素子用の配向膜兼透明電極として機能することが実証された。ラビング処理を施した PEDOT/PSS 膜を用いて揃い配向の液晶セルを作製し、THz 帯における透過スペクトルを観察したところ、液晶の揃い配向と屈折率異方性に起因して、THz 波の偏波の状態が液晶セルを透過することで変化することが確認された。また、その特性は電圧の印加により制御可能であった。加えて、観測された結果は、液晶の異方性やセル構造に起因する多重干渉を考慮した光学計算の結果と整合した。このことから液晶と透明電極とを組み合わせることで、THz 帯における偏波変調器や強度変調器の得られることが実証された。一方で、その応答時間についても調査したところ、THz 帯で波長板等として利用できるようなリタデーションを与えるためには、液晶層の厚さを mm のオーダーとする必要があるため、電圧により高速制御を実現することは難しいことも明らかとなった。これらの結果は既に査読付き学術論文にて詳しく報じている【T. Sasaki et al., *J. Appl. Phys.* **121**, 143106 (2017)】。

以上の検討結果から、液晶が THz 素子用材料として有用であることは実証できた。また、いずれの実験結果についても、液晶の屈折率異方性を考慮した一般的な光学モデルを用いて理論的に説明可能であったことから、研究の目的の項において掲げた目的 1 は達成されたと考えられる。そこで、引き続き、光反応性液晶を介した THz 波の光制御に関する検討を進めた。前述の色素ドープネマチック液晶の THz 帯における光学定数を測定した結果、色素の添加によって液晶の光学定数は大きく変化しないことが確認された。このことから、色素材料や添加量を適宜選定することにより、THz 帯における光学定数に影響を与えずに、液晶へ光応答性を付与できることが明らかとなった。THz 帯における複屈折は 0.15 程度であったことから、研究の目的の項に掲げた目的 2 も達成された。説明が前後するが、色素ドープ液晶に色素が吸収を有する波長域の光を照射した場合、吸収に伴う温度上昇により、液晶の屈折率が変化することがある[5,6]。また、温度上昇により液晶相から等方相への転移も生じる場合がある。即ち、色素ドープ液晶は光照射によ

て屈折率及びその異方性の大きさが制御可能な材料といえる。本研究では、この色素ドープ液晶を用いて揃れ配向の液晶セルを作製し、その THz 帯における透過スペクトルを観測した。その結果、色素が吸収を有する波長域の十分強いレーザー光を照射することで、揃れ配向に起因して生じる偏波変換特性の消失することが確認された。また、照射するレーザー光の強度を変えることで、透過波の偏波状態を制御できることも実証された。応答速度についても調査した結果、光照射から定常状態に達するまでの速度は電圧印加の場合と同程度であったが、光を遮断してからの緩和時間は、電圧印加の場合と比べて 30 分の 1 程度となり、電圧制御に比べた場合の光制御の優位性が示された。

研究計画の時点で掲げた目標のうち、研究の目的の項にある目的 3 を現時点で達成するには至っていない。しかしながら、光反応性液晶を用いることで、THz 帯における偏波を光により変調できることは実証されたことから、本研究によりある程度の成果は得られたと考えている。これまでに得られた知見をもとに、光反応性液晶とベクトルホログラフィと組み合わせた THz 偏波の時空間変調技術を確立すべく、今後も研究を継続する。

[4] H. Ono and Y. Harato, *J. Appl. Phys.* **85**, 676 (1999).

[5] I. C. Khoo, *Phys. Rep.* **471**, 221 (2009).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 2 件)

Tomoyuki Sasaki, Kohei Noda, Nobuhiro Kawatsuki, and Hiroshi Ono, "Universal polarization terahertz phase controllers using randomly aligned liquid crystal cells with graphene electrodes," *Opt. Lett.* **40**, 1544-1547 (2015). (査読有)

DOI: 10.1364/OL.40.001544

<https://www.osapublishing.org/ol/abstract.cfm?uri=ol-40-7-1544>

Tomoyuki Sasaki, Hiroki Okuyama, Moritsugu Sakamoto, Kohei Noda, Hiroyuki Okamoto, Nobuhiro Kawatsuki, and Hiroshi Ono, "Twisted nematic liquid crystal cells with rubbed poly(3,4-ethylenedioxythiophene)/poly(styrenesulfonate) films for active polarization control of terahertz waves," *J. Appl. Phys.* **121**, 143106 (2017). (査読有)

DOI: 10.1063/1.4981244

<https://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.4981244>

[学会発表](計 3 件)

奥山大樹、坂本盛嗣、野田浩平、川月喜弘、小野浩司、佐々木友之、ツイストネマチック液晶セルによるテラヘルツ波の偏波制御、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、14a-211-8、2017 年 3 月 14 日

串田裕紀、坂本盛嗣、野田浩平、岡本浩行、小野浩司、佐々木友之、ワイヤーグリッド電極を用いた液晶セルによる電圧制御型テラヘルツアッテネータ、*Optics & Photonics Japan 2017*、1aC1、2017 年 11 月 1 日

奥山大樹、坂本盛嗣、野田浩平、川月喜弘、小野浩司、佐々木友之、色素ドープ液晶セルを用いた可視光によるテラヘルツ偏波の制御、*Optics & Photonics Japan 2017*、1pE6、2017 年 11 月 1 日

[図書](計 0 件)

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://hertz.nagaokaut.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐々木友之 (SASAKI, Tomoyuki)

長岡技術科学大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：90553090