

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：32503

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25560138

研究課題名(和文) 広帯域テラヘルツ波反射分光による土器の非破壊分析

研究課題名(英文) Non-destructive analysis of earthen wares by wide-band THz-wave reflection spectroscopy

研究代表者

水津 光司 (Suizu, Koji)

千葉工業大学・工学部・准教授

研究者番号：20342800

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：各種土器に対してテラヘルツ波透過および反射分光を実施した。透過分光では、0.4THz以下のスペクトル帯域において吸収係数を算出し、土器ごとに差異が確認された。反射分光では、1THz以下のスペクトル帯域において複素誘電率を算出し、それぞれ土器ごとにスペクトル形状の差異が確認された。これらの差異は土器を構成する成分や結晶構造の違いに起因する可能性があり、テラヘルツ波による土器の非破壊計測の可能性を示すことができた。また、反射分光測定における位置設定精度の影響を定量的に評価し、今後の測定装置としての方向性を示した。

研究成果の概要(英文)：Transmission and reflection THz-wave spectroscopy for earthen wares was demonstrated. Absorption coefficient of the earthen wares were estimated by transmission spectroscopy, and slight difference of absorption spectra of the earthen wares below 0.4 THz region were confirmed. Complex refractive index of the earthen wares were estimated by reflection spectroscopy, and clear difference of refractive index spectra of the earthen wares below 1.0 THz region were confirmed. These difference of the spectra would be originated in crystalline structure or components of the earthen wares. The capability of non-destructive analysis for an earthen ware by THz-wave was successfully demonstrated. We evaluated quantitatively the effect of the positioning accuracy, and indicated the direction of the measurement system.

研究分野：非線形光学

キーワード：テラヘルツ波 文化財科学 非破壊分析

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ波とは周波数帯にして約 0.3 THz ~ 10 THz の電磁波のことを指し、電波と光波の中間領域に位置する。電波的な物質透過性を有する最短波長域にあり、紙やセラミック、半導体など様々な物質を透過する性質を持つ。かつ、多くの物質がテラヘルツ帯において分子間力等に起因する特徴的なスペクトル構造(指紋スペクトル)を有する。一方、縄文式土器、弥生式土器などの主成分はシリコン、チタン、アルミニウム等の酸化物である。原材料である粘土によって土器の主成分の構成比が変化し、焼成条件によって主成分の結晶構造が変化すると考えられる。テラヘルツ波は測定対象の結晶構造に起因した特異な指紋スペクトルを有する事から、土器の構成要素である酸化物微結晶の成分や結晶構造に違いがある場合、透過率および反射率が変化する。即ち、土器の原材料である粘土の違いや、同じ粘土を用いた場合でも焼成条件の違いを非破壊で判別出来る可能性が在る。

2. 研究の目的

一般的なテラヘルツ分光器である、光伝導アンテナを用いたフェムト秒レーザー励起時間領域分光装置では、出力が弱く測定周波数域も 3 THz 程度であり、市販の装置ではこの辺りが限界である。そこで、代表者が考案・実証して来た新規の非線形光学技術をフェムト秒レーザー励起光整流テラヘルツ波発生に適用し、時間領域分光装置の高出力化、広帯域化を実現することで、測定可能周波数領域を拡大する。かつ、反射分光可能な光学系を設計・開発し、指紋スペクトルが豊富に含まれると考えられる 1THz 以上の高周波領域での情報を抽出し、土器から得られる情報量の大幅な増大を図る。以上により、広範なテラヘルツ波分光結果と考古学的な知見との相関関係を検討する。

3. 研究の方法

(1) テラヘルツ波透過および反射分光

本研究で用いた THz-TDS 実験装置は、光学系を構成するミラー等をファイバーに置き換え、簡便かつ安定的にテラヘルツ波の発生、検出を行うことができる。これらは、外部レーザー光源(パルス幅:100 fs、駆動周波数:100 MHz)、光遅延による THz 波走査制御部、THz 波を発生及び検出するファイバー結合型光伝導アンテナ、制御・計測 PC から構成される。本装置は送信用の光伝導アンテナが試料正面に対して 30° の角度で固定されて設置しており、受信用の光伝導アンテナは試料中心に対して 0~90° の範囲で円弧上に 0.01° の精度で制御することが出来る。更に、試料を設置するステージには回転ステージが導入されており、これも 0.01° の精度で制御することが出来る。

本実験で使用したすべての土器は、愛知

県安城市(個別の遺跡名等不明)にて発掘された物を使用した。形式学的分類がなされており、縄文土器、弥生土器、古墳式土器(土師器、須恵器)と大別できる。

透過分光においては、厚さが L cm の資料に対テラヘルツ波透過率を計測し、ランベルト・ベールの法則により吸収係数を算出して比較を行った。

反射分光においては、金属板からの反射をリファレンス信号とし、土器による反射波の複素振幅の実測値に対し、フレネルの式より複素屈折率を算出して比較を行った。

(2) 反射分光系の評価

反射分光では、リファレンスである金属の反射測定を先に行い、サンプルである土器に設置し直して測定するという手順である。その際、リファレンスとサンプルの反射面の位置を全く同じ位置にすることが出来ないという問題が生ずる。反射面の位置ずれは、位相シフトに大きな誤差をもたらすことから、光学定数の算出において重大な影響を及ぼす。そこで、試料の設置位置をステージにより変化させ、サンプル設置位置の誤差の影響を考察した。尚、試料の反射面は、光学遅延に換算して 2 psec(距離にして約 0.6 mm) ずつ、もしくは、0.1 psec(距離にして約 0.03 mm) ずつ変化させた。

(3) チェレンコフ位相整合

励起光源には、基本波の波長 1560nm、第 2 高調波の波長 780nm、パルス幅 60fsec、平均パワー 60mW、繰返し周波数 50MHz のエルビウム添加ファイバーレーザーを使用した。基本波と第 2 高調波を空間的に分離し、基本波をテラヘルツ波発生に使用した。熱式検出器であるシリコンボロメータにより平均パワーを計測し、光伝導アンテナによって発生したテラヘルツ波との比較を行った。

(4) テラヘルツエリプソメトリ

本研究で行った反射分光では、反射面ずれが起こりにくい機構にしているが、完全に反射面ずれを除去することは困難である。従って、サンプル設置による位置ずれの生じない実験系に改善する必要があることがわかった。そこで、リファレンス信号取得の必要の無い、テラヘルツエリプソメトリの導入を検討した。

4. 研究成果

(1) テラヘルツ波透過および反射分光

テラヘルツ波による土器の透過分光では、有効スペクトル帯域は 0.4 THz 未満の低周波領域に限られたが、吸収係数に差異が現れた。これは、粘土の構成成分の差異の可能性がある。また、土器表面の凹凸による散乱の影響は回避でき、赤外線分光では粒径が大きく散乱の影響が大きい試料でもテラヘルツ波を用いれば計測できるという優位性を実証で

きた。しかし、土器固有の情報は1 THz以上の高周波帯にある可能性があり、本実験では当該周波数領域の情報を得ることが出来なかった。

各種土器に対してテラヘルツ波反射分光を実施し、各種光学定数(屈折率、吸収係数、すなわち複素誘電率)が得られ、それぞれ土器ごとに差異や共通点が確認された。図1に算出された吸収係数スペクトルを示す。

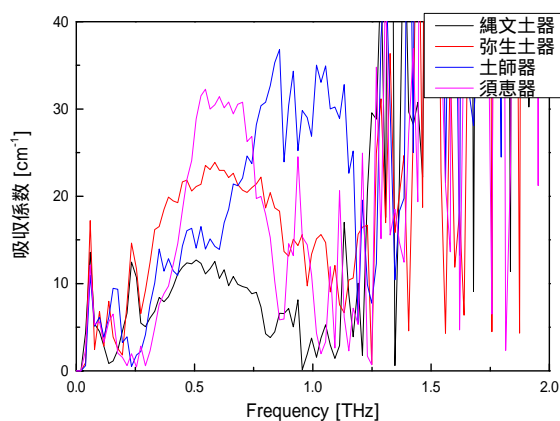


図1 各土器の吸収係数スペクトル

土器の違いによる差異がはっきりと表れていることが分かる。また、吸収スペクトルの差異は、主に0.5 THz以上の高周波領域に現れている。それぞれ時代の異なる土器によって特徴のある結果が得られたことから、粘土を構成する成分の違いや、焼成条件の違いによる結晶性の差異などが表れている可能性がある。

(2) 反射分光系の評価

反射面のずれによって振幅スペクトルに変化は無いが、位相スペクトルが変化する。このため、光学定数を算出すると大きな違いを生じる。光学遅延を2 psecずつ変化させた場合の算出された屈折率スペクトルを図2に示す。尚、図中では4 psec毎の変化を表示している。

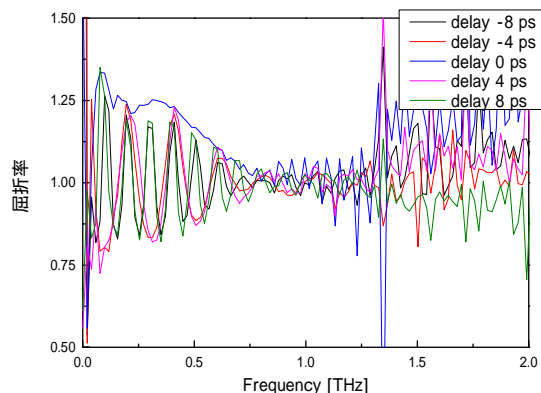


図2 光学遅延を4 psecずつ設けた場合の屈折率スペクトル

光学遅延が4 psec以上になると屈折率の

計算に甚大な問題が発生していることがわかる。屈折率が約1の値を中心として大きく値が振動している。また、光学遅延を0 psecと設定した場合には、一見、屈折率を正しく算出しているようにみえる。しかし、この反射面ずれがない場合でも全体的に屈折率が1前後と低く、これは空気の屈折率とほぼ同じであり、正確に屈折率を算出できていない可能性がある。そこで、光学遅延を0.1 psecずつ変化させた場合の算出された屈折率スペクトルを図3に示す。

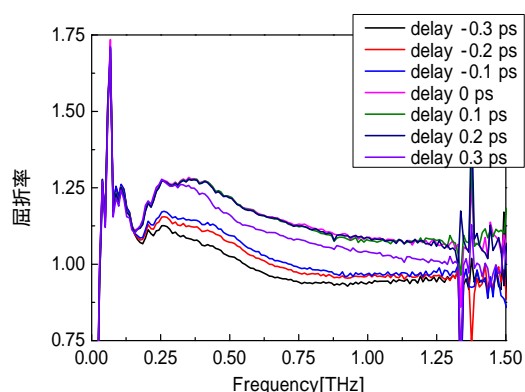


図3 光学遅延を0.1 psecずつ設けた場合の屈折率スペクトル

反射面ずれを小さくしても屈折率スペクトルに差が出るのがわかる。光学遅延が-0.1 ~ -0.3 psecの場合には屈折率が1を下回っており、屈折率を正確に算出できていない。光学遅延の0.1 psecを距離に換算すると0.03 mmであり、この程度の位置ずれはサンプル設置時に常に生じる値である。従って、サンプル設置による位置ずれの生じない実験系に改善する必要が生じる。今後は、リファレンス信号取得の必要の無い、テラヘルツエリプソメトリの導入を行っていく必要がある。

(3) チェレンコフ位相整合

従来型の光伝導アンテナによるテラヘルツ波発生と、チェレンコフ位相整合方式によるテラヘルツ波発生を行い、平均出力の比較を行った。光伝導アンテナ使用時に比べ、10倍以上の出力向上が確認できた。現状の装置では時間波形取得にまで至っていないが、光学系の設定等により出力増強およびスペクトル拡大が可能であり、土器の指紋スペクトルが豊富に存在する可能性のある、1THz以上の高周波領域での測定に展開可能である。

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0件)

[学会発表](計2件)

村瀬岳志、近藤啓司、水津光司、山本直

人、テラヘルツエリプソメトリによる土器の非破壊計測、第 15 回レーザー学会東京支部研究会、2015 年 3 月 5 日、東海大学(東京都)
近藤啓司、水津光司、山本直人、テラヘルツ波透過および反射分光による土器の非破壊検査、日本文化財科学会第 31 回大会、2014 年 7 月 5～6 日、奈良教育大学(奈良県)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 1 件)

名称：テラヘルツ波発生装置
発明者：水津光司、澁谷孝之、瀧澤薫、筒井俊博、川瀬晃道
権利者：名古屋大学
種類：特許
番号：特許第 5354582 号
出願年月日：平成 21 年 3 月 4 日
取得年月日：平成 25 年 9 月 6 日
国内外の別：国内

〔その他〕

特に無し

6. 研究組織

(1) 研究代表者

水津 光司 (SUIZU, Koji)
千葉工業大学・工学部・准教授
研究者番号：20342800

(2) 連携研究者

山本 直人 (YAMAMOTO, Naoto)
名古屋大学・大学院文学研究科・教授
研究者番号：60240800