

# テラヘルツイメージングによる非破壊検査技術

名古屋大学エコトピア科学研究所・融合プロジェクト部門 川瀬晃道

## 1. 諸言

近年、テラヘルツ波 (THz) 波と呼ばれる約 0.3 ~ 10 THz (波長 1 mm ~ 30  $\mu\text{m}$ ) の電磁周波数帯の光源開発とその応用開拓が進んでいる。この帯域は電波と光波の中間に位置しており、テラヘルツ波は、電波のように紙、プラスチック、ビニール、繊維、半導体、脂肪、粉体、氷など様々な物質を透過できるとともに、光波のようにレンズやミラーで空間を自由に回り回すことができる。また、電波に比べて波長が短いため、多くのイメージング用途にとって必要十分な適度な空間分解能を有している。さらに近年、ビタミンや糖、医薬品、農薬など様々な試薬類に固有の吸収スペクトルがテラヘルツ帯で見出され、その応用可能性が広がりつつある。

テラヘルツ領域は、光波と電波のそれぞれの領域が重要な応用技術とともに発展し熟成してきたのとは対照的に、技術面でも応用面でも未開拓の領域として認識されていた。これは、1 THz 以上のテラヘルツ波を効率よく発生するための技術が確立されていなかったためである。従来、テラヘルツ波発生のためには自由電子レーザーや P 型 Ge レーザなどが用いられてきたが、これらの装置は大掛かりであることや極低温でしか動作させることができないといった制約があるため、その利用は主に研究用途に限られていた。しかし最近では、フェムト秒レーザー技術の進歩によって広帯域テラヘルツ波パルスが比較的容易に発生できるようになったことや、非線形結晶を用いた光パラメトリック発生・差周波発生を利用することでテーブルトップサイズであり、なおかつ常温で動作可能である実用的なテラヘルツ光源の開発が進んでいる。これらのテラヘルツ波発生・検出技術の急速な発展によりテラヘルツ波応用に関する関心が高まっている。

テラヘルツ波の応用が見込まれる分野は実に

広範囲にわたる。それは、テラヘルツ波が物質を透過し、数百  $\mu\text{m}$  の空間分解能を有し、人体に安全で、試薬類の指紋スペクトルを有し、さらには DNA の 1 本鎖と 2 本鎖の識別・水と氷の吸収差・半導体不純物への感度・ラセミ体の判別などといった他の電磁周波数帯に無いユニークな特徴を有しているためである。

テラヘルツ波に期待されている産業応用可能性の一部を列挙すると； LSI チップの故障解析、郵便物中の危険物検査、空港やビルのゲートにおける爆弾・セラミックナイフなどの危険物検査、セラミックスやプラスチック製品の内部欠陥検査、スペースシャトルの外壁タイルの検査、遮蔽空間内の高感度有毒ガス検出、壁内部の腐食や亀裂などの診断、インク濃度検査、バイオチップの蛍光ラベルフリー診断、病理サンプルのオンサイト診断、皮膚がんの早期診断、美肌(角質層)診断、車の塗装検査、フレキシブルなテラヘルツ導波路を用いた内視鏡などへの応用、医薬錠剤の多層コートなどの品質検査、病院で渡される包装薬の誤成分チェック、薬品工場での異種錠剤混入検査、半導体ウェハのドーパント密度の分布計測、ナノコンポジット材料の解析、小袋包装のヒートシール部欠陥検査、青果物の品質評価、植物工場の灌水自動制御、冷凍食品などの凍結解凍サイクルの最適化、凍結路面診断、粉ミルクなど粉体中の異物検出、卵の鮮度検査、胡麻などの水分含有量検査、油類の成分検査、等々既に公表されている応用可能性の一部を挙げるだけでもこれだけの多岐にわたる。

## 2. テラヘルツ時間領域分光法

テラヘルツ光源は、広帯域テラヘルツパルス光源と単色テラヘルツ光源の 2 種類に大別することができる。近年、テラヘルツ波が世界的注目を集めるに至った大きな要因のひとつは、フェムト

秒レーザを用いた広帯域テラヘルツパルスの発生・検出法が開発されたことである。この技術はテラヘルツ時間領域分光法 (Terahertz Time Domain Spectroscopy: THz-TDS) と呼ばれ、現在世界で最も広く用いられている手法である。THz-TDS は、フェムト秒光パルスにより励起されたテラヘルツパルスの実時間波形を測定し、それをフーリエ変換することで複素電場振幅を得ることができる。これにより電場強度だけでなく位相情報を得ることができるため、クラマース・クロニツヒ変換を用いることなく試料の複素誘電率を直接導出することができる。さらに、計測が高速・簡便であることから、分光イメージングなどへの期待が高まり、広く利用され始めた。THz-TDS については多くの優れた解説論文<sup>4)</sup>などがあるため本稿では詳述しない。

THz-TDS 装置のテラヘルツ波伝搬光路に試料を設置することで、分光測定や分光イメージングを行うことができる。Fig. 1 は、乾燥した唐辛子とえびの 1THz における透過イメージであるが、内部の種などの構造が明瞭に画像化できていることが確認できる<sup>7)</sup>。X 線を用いた場合、いわゆるソフトマテリアルを画像化するのは容易ではないが、テラヘルツ波を用いることで鮮明な透視像を得ることができる。



**Fig. 1 Spectroscopic THz imaging of dried red pepper and dried shrimp**

### 3. 非線形光学効果によるテラヘルツ光源

単色テラヘルツ光源は、単位周波数あたりの強度が強いことや、周波数強度を直接測定できるため測定結果が試料の形状に依存しにくいといった利点を有している (THz-TDS では、試料形状による時間波形の歪みがスペクトルに影響を及ぼすため問題となることがある)。現在、高出力化や広帯域波長可変性の実現により、分析機器の開発やセキュリティ応用などに展開を始めている。代表的な波長可変単色テラヘルツ光源として、光パラメトリック発生と差周波発生を用いた光源がある。光パラメトリック発生では、ニオブ酸リチウム結晶 ( $\text{LiNbO}_3$ ) などの非線形結晶に高強度の励起光を入射すると、光活性フォノンとの相互作用によりテラヘルツ波とアイトラー光に分離されるという原理を用いている<sup>8)</sup>。差周波発生では、わずかに波長の異なる光源を非線形結晶に入射すると、二次の非線形効果によりテラヘルツ領域の差周波が発生するという原理を用いている。非線形結晶としては、無機・有機の材料で GaP, GaSe, ZnGeP<sub>2</sub>, DAST などが用いられる。中でも有機非線形結晶 DAST はその光学的特性から注目を集めており、近年では DAST を用いた 1 ~ 20 THz 広帯域波長可変単色テラヘルツ光源が報告されている<sup>9)</sup>。

ここでは、光パラメトリック発生を用いた波長可変高出力テラヘルツ波光源について解説する。励起用の高強度光パルスが非線形光学結晶に入射されると、光学活性フォノンとテラヘルツ波との混成波であるポラリトンに起因する誘導ラマン散乱によって、励起光と波長がわずかに違う光 (アイトラー光) とテラヘルツ波 (シグナル光) が、強いパラメトリック相互作用により発生する。

パラメトリック光源の開発では、非線形光学結晶としてニオブ酸リチウム結晶 ( $\text{LiNbO}_3$ ) を用いることで 1 ~ 3 THz (波長 100 ~ 300  $\mu\text{m}$ ) 付近をカバーする波長可変光源が実現されている。この光源は、テラヘルツ波パラメトリック光源と

呼ばれており、その発生方法によって大きく 2 つに分類できる。1 つは、発生するアイドラー光に対して共振器構造を有さないテラヘルツ波パラメトリック発生器 (TPG) である。もう 1 つは、共振器構造を有するテラヘルツ波パラメトリック発振器 (TPO) である。従来の TPG は、共振器を有さないため周波数選択機構がなく、発生するテラヘルツ波線幅は 500 GHz 以上あり、出力も TPO よりもはるかに小さいものであった。

それに対して、TPG に光注入を導入することで、THz 波の線幅が数百 GHz からフーリエ限界の約 100 MHz へ、ピーク出力が数 mW から数百 mW へ (エネルギー出力: 数 pJ から 1 nJ 以上へ) と大幅に向上した。 Fig. 2 に光注入型テラヘルツパラメトリック発生器 (is-TPG) の実験系を示す。非線形光学結晶として LiNbO<sub>3</sub> を縦列に配置し、片方の結晶に Si プリズムアレイを圧着することでテラヘルツ波の取り出し効率を高めている。Q スイッチ Nd:YAG パルスレーザー (1.064 μm) をポンプ光として使用し、発生するアイドラー光への光注入には連続波で波長可変な外部共振器半導体レーザー (波長: 1.066 ~ 1.075 μm) を用いた。ポンプ光、シード光ともに単一縦モード周波数である。アイドラー光および THz 波はノンコリニア位相整合条件を満たす波数ベクトル方向に発生する。この光注入方法では、半導体レーザーの波長を制御するだけで、自動的に位相整合角度を満たす仕組み (アクロマティック位相整合) も開発されている。

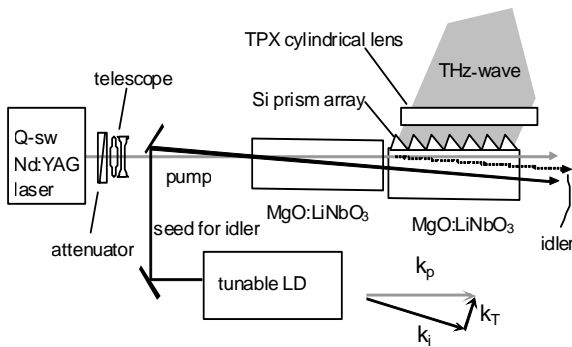


Fig. 2 Setup used for our experimental injection seeded THz-wave parametric generator (IS-TPG).

波長可変半導体レーザーの波長と結晶への入射角度を調整することで波長 125 ~ 430 μm、すなわち周波数 0.7 ~ 2.4 THz の範囲でのチューニングが可能である。 Fig. 3 はステンレス製ライトパイプ中で減圧した水蒸気 (H<sub>2</sub>O) スペクトルの測定例である。1.92 THz 付近の近接した 2 本の吸収線に対し約 100 MHz (0.0033 cm<sup>-1</sup>) の分解能が得られている。THz 帯の典型的なパルス波形から計算で求まるフーリエ限界は 136 MHz であり、実験的に得られた分解能とほぼ一致することから、THz 波の線幅はほぼフーリエ限界まで狭線化され、周波数純度は Δν/ν < 10<sup>-4</sup> まで高められたことがわかる。

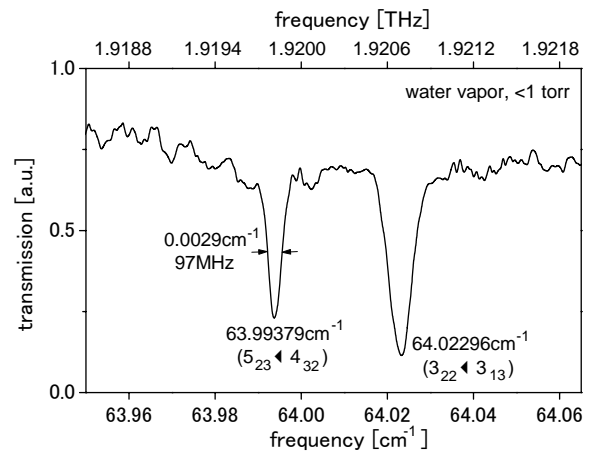


Fig. 3 Absorption spectrum measurement of low-pressure water vapor using is-TPG.

#### 4. 分光イメージング応用

テラヘルツ波の応用可能性を模索する動きが世界中で加速しているが、ここでは我々が進めているテラヘルツ波応用研究をいくつか紹介していくこととする。まず広帯域波長可変テラヘルツ光源を用いたテラヘルツ分光イメージング技術について述べる。これは、複数の試薬が混ざったサンプル中の特定試薬の分布密度を画像化する技術で、光源の広帯域波長可変性、および 3THz 以下の低周波域で次々見出されている試薬類の指紋スペクトルを活かした成果である<sup>8)</sup>。この

技術を用いて、郵便物検査、覚醒剤・爆発物所持検査、医薬品検査、病理組織診断、などへの応用が期待される。封筒内の薬物検出の実証実験として、薬物を 15 mm×15 mm のポリエチレン製小袋に入れ、国際郵便用の封筒内に封入し、波長可変テラヘルツ光源を用いた分光イメージングによる検出を試みた。実験に使用した薬物は、合成麻薬 MDMA、覚せい剤メタンフェタミン、及び参照資料のアスピリンである。データ処理には、吸収ピークだけでなくスペクトルデータ全体の情報を有効活用できる主成分分析法を用いた。結果を Fig. 4 に示す。右側の各画像は、マルチスペクトル画像とスペクトルデータから得られた各成分の空間分布を示す。上から順に、MDMA、アスピリン、メタンフェタミンであり、成分ごとの二次元分布が抽出できている。また、この方法は物質が混在するときにも適用可能であることを確認しており、簡便かつ有効な処理方法となっている。また、テラヘルツ波の散乱光モニタリングにより隠された粉体の摘発が可能であることを示し、大量に流通する郵便物の中から迅速に疑わしい郵便を抽出する実験を理研の大谷らが進めている<sup>9)</sup>。

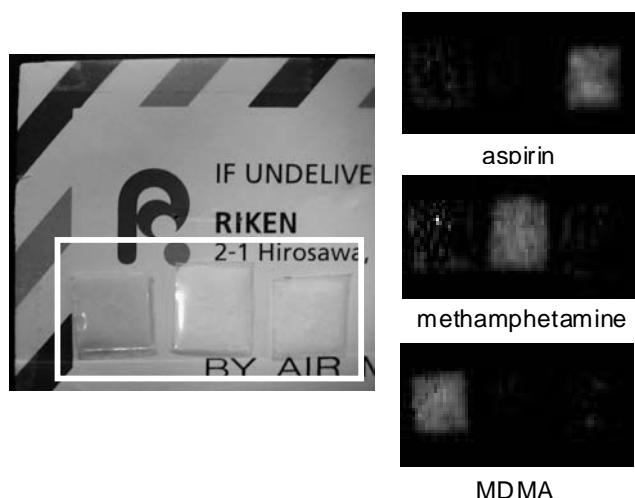


Fig. 4 Terahertz spectroscopic imaging of illicit drugs hidden in an envelope.

## 5. テラヘルツトモグラフィ

続いて、ファイバレーザを用いた高分解能テラヘルツトモグラフィに関する研究について紹介する。テラヘルツトモグラフィの産業応用を考える際には、耐環境性能に優れたフェムト秒ファイバレーザを用いた装置が好ましい。しかしながら、一般的にファイバレーザのパルス幅や光強度はチタンサファイアレーザに比べて劣るため性能の良いテラヘルツトモグラフィ装置を実現させることは困難であった。これに対して我々は光ファイバの非線形性と分散効果を厳密に制御することで 17 fs の高ピーク強度パルスの生成を行い、装置の高分解能化に成功している<sup>10)</sup>。その奥行き分解能は、厚さわずか 5  $\mu\text{m}$  のテフロンフィルムの膜厚を測るのに十分な性能であった。Fig. 5 はファイバレーザを用いた高分解能テラヘルツトモグラフィ装置で測定された厚さ 90  $\mu\text{m}$  の紙 3 枚の断層画像である。紙の膜厚が正確に再現できているのと同時に、高分解能特性により紙と紙の間のわずかな隙間も観測できているのが確認できる。

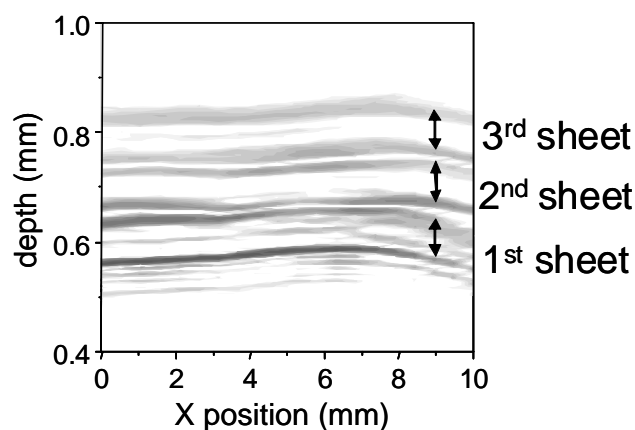


Fig. 5 Terahertz tomography of three sheets of papers.

測定試料からの反射テラヘルツ波を検出できるように光学系を調整することで、THz-TDS 装置は分光装置としてだけでなく Time of Flight 方

## 参考文献

式のテラヘルツトモグラフィ（断層画像測定）装置として機能する。試料が多層構造を有する場合、各層からの反射テラヘルツパルスの時間遅延を検出しそれを距離に換算することで、非破壊・非接触で試料の断層像を画像化することができる。テラヘルツ波を用いるため、被爆の恐れのある X 線 CT と異なり安全・安心な測定が可能である。また、テラヘルツ波の透過特性により、光波を用いた光コヒーレンストモグラフィ (OCT) では測定できないような様々な試料の断層情報を得ることができる。さらに、テラヘルツパルスはサブピコ秒のパルス幅を持っているため、数十  $\mu\text{m}$  という非常に高い奥行き分解能を実現することができる。このテラヘルツトモグラフィの測定対象としては、工業製品の多層塗装膜や錠剤のコーティング、人肌の角質層など幅広い応用が期待されており、高分解能化や高速イメージングに関する研究が行われている。

## 6. 結言

本稿ではスペースの都合で記すことができなかったが、紹介した他に、レーザーテラヘルツ放射顕微鏡という新しい非破壊非接触の計測診断技術を阪大斗内研と共同で開発し、半導体チップ (LSI) の故障解析への応用を展開している<sup>11)</sup>。さらに、様々なテラヘルツ技術やミリ波技術を用いて、フィルター内部のススの THz-CT 観測、メタルメッシュを用いた DNA/タンパクチップ開発<sup>12)</sup>、および各種非破壊検査、などへの幅広い応用展開を図っている<sup>13-16)</sup>。これらの産業応用を通して、テラヘルツは本当に役に立つということアピールしていきたいと願っている。

## 謝辞

本稿の内容は、名大:水津光司、澁谷孝幸、高柳順、西澤典彦(現阪大)、理研:林伸一郎、大谷知行、伊藤弘昌、および科学警察研究所、キヤノン、アイシン精機、栃木ニコンほか関連各位との共同研究成果である(敬称略)。

- 1) M. Tonouchi, Nature Photonics **1**, 97 (2007).
- 2) 萩行正憲, 谷正彦, 長島健, 応用物理 **74**, 709 (2005).
- 3) 斗内政吉編, テラヘルツ技術 (オーム社, 2006).
- 4) 阪井清美, 分光研究 **50**, 261 (2001).
- 5) K. Kawase, J. Shikata and H. Ito, J. Phys. D: Appl. Phys. **35** R1 (2002).
- 6) T. Shibuya, T. Akiba, K. Suizu, H. Uchida, C. Otani and K. Kawase, Appl. Phys. Exp **1**, 042002 (2008). T. Taniuchi, S. Okada, and H. Nakanishi, J. Appl. Phys. **95**, 5984 (2004).
- 7) K. Kawase, Optics & Photonics News **15**, 35 (2004).
- 8) K. Kawase, Y. Ogawa, Y. Watanabe, and H. Inoue, Opt. Exp. **11**, 2549 (2003).
- 9) 澁谷孝幸, 山下雅弘, 小川雄一, 大谷知行, 井上博之, 金森達之, 川瀬晃道, 電気学会論文誌 C, **125**, 545 (2005).
- 10) J. Takayanagi, H. Jinno, S. Ichino, K. Suizu, M. Yamashita, T. Ouchi, S. Kasai, H. Ohtake, H. Uchida, N. Nishizawa, and K. Kawase, Opti. Exp. **17**, 7533 (2009).
- 11) M. Yamashita, C. Otani, K. Kawase, T. Matsumoto, K. Nikawa, S. Kim, H. Murakami, and M. Tonouchi, Appl. Phys. Lett. **94**, 191104 (2009).
- 12) H. Yoshida, Y. Ogawa, Y. Kawai, S. Hayashi, A. Hayashi, C. Otani, E. Kato, F. Miyamaru, K. Kawase, Appl. Phys. Lett. **91**, 253901 (2007).
- 13) L. Cheng, S. Hayashi, C. Otani, K. Kawase, T. Miyazawa, Y. Ogawa, Appl. Phys. Lett. **92**, 181104 (2008).
- 14) Y. Morita, A. Dobroiu, K. Kawase, and C. Otani, Optical Engineering, **44**, 019001 (2005).
- 15) M. Mizuno, C. Otani, K. Kawase, Y. Kurihara, K. Shindo, Y. Ogawa, H. Matsuki, J. Electrom. Waves Appl. **20**, 341 (2006).
- 16) S. Yoshida, E. Kato, Y. Nakagomi, K. Suizu, Y. Ogawa, K. Kawase, Appl. Phys. Exp. **2**, 012301 (2009)