

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.1】 2.3 加速器質量分析・加速器ビーム分析、
7.4 イオンビーム一般のコードシェア

[18p-D62-1~17] CS.1 2.3 加速器質量分析・加速器ビーム分析、7.4 イオンビーム一般のコードシェア

[18p-D62-1]

Auナノ粒子を内包するSiO₂フリースタンディング膜の作製と特性評価

○久保田 真歩¹、一宮 正義²、番 貴彦²、柳澤 淳一² (1.滋賀県立大院工、2.滋賀県立大工)

[18p-D62-2]

反応性ガス雰囲気下GCIB照射によるエッチングのガス分圧および基板温度依存性

○(M1C)伊藤 汰一¹、竹内 雅耶¹、豊田 紀章¹ (1.兵庫県立大学工)

[18p-D62-3]

中性ガスクラスタービームを用いたCu膜のドライエッチング

○(M1)池田 圭佑¹、田中 秀幸¹、竹内 雅耶¹、豊田 紀章¹ (1.兵庫県立大工)

[18p-D62-4]

X-ray PEEM測定用液体セルに向けたGCIB照射による極薄SiNxメンブレンの応力制御

○竹内 雅耶¹、豊田 亜里紗¹、豊田 紀章¹ (1.兵庫県立大工)

[18p-D62-5]

自立グラフェン膜への水クラスターイオンビーム照射効果

○(M1C)諸葛 亮佑¹、盛谷 浩右¹、持地 広造²、乾 徳夫¹ (1.兵庫県大工、2.NPO分析産業人ネット)

[18p-D62-6]

CIDにおける有機分子解離メカニズムに関する研究

○(M1)西坂 光貴¹、瀬木 利夫¹、松尾 二郎¹ (1.京大院工)

[18p-D62-7]

THz加速のための狭線幅差周波光源開発

○竹家 啓^{1,2}、Yahia Vincent^{1,2}、石月 秀貴^{2,1}、平等 拓範^{2,1} (1.分子研、2.理研)

[18p-D62-8]

LiF 蒸着フィルムを用いた透過型検出器の検出効率向上

○(M1)仙田 敬¹、藤井 晴也¹、中溝 珠里²、間嶋 拓也²、安田 啓介¹ (1.京府大生命環、2.京大院工)

[18p-D62-9]

JAEA-AMS-TONOにおける加速器質量分析装置に関する研究開発; 2024年秋

○藤田 奈津子¹、神野 智史¹、南谷 史菜¹、三宅 正恭¹、松原 章浩²、前田 祐輔¹、木田 福香¹、小川 由美¹、西尾 智博²、大前 昭臣³、宇野 定則³、渡邊 隆広¹、木村 健二¹、島田 耕史¹ (1.原子力機構、2.ペスコ、3.ビームオペレーション)

[18p-D62-10]

微量放射性炭素測定のための前処理技術の開発

○(P)南谷 史菜¹、藤田 奈津子¹、神野 智史¹、西尾 智博²、渡邊 隆広¹ (1.原子力機構、2.ペスコ)

[18p-D62-11]

都市大タンデムの現状 ～分析用ビームラインの状況～

○羽倉 尚人¹ (1.都市大)

[18p-D62-12]

東京大学MALTの現状－2024秋－

○山形 武靖¹、徳山 裕憲¹、土屋 陽子¹、戸谷 美和子¹、斉 遠志¹、松崎 浩之¹ (1.東大MALT)

[18p-D62-13]

³⁶Clの加速器質量分析における妨害同重体³⁶Sのイオン源での抑制

○笹 公和^{1,2}、松村 万寿美¹、吉田 哲郎¹、高橋 努¹ (1.筑波大応用加速器、2.筑波大数物)

[18p-D62-14]

ハイマツ試料中放射性炭素濃度の年変動に関する研究VI

○武山 美麗^{1,2}、森谷 透^{1,2}、櫻井 敬久²、宮原 ひろ子³、門叶 冬樹^{1,2} (1.山形大AMSセンター、2.山形大理、3.武蔵美)

[18p-D62-15]

自然環境におけるヨウ素同位体システムの研究3

○松崎 浩之¹、戸谷 美和子¹、斉 遠志¹、山形 武靖¹ (1.東大MALT)

[18p-D62-16]

Temporal Changes of Iodine-129 in the Canada Basin Over the Past Decade

○(P)Yuanzhi Qi¹, Takeyasu Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Hisao Nagai², Yuichiro Kumamoto³, Qiuyu Yang¹, Xinru Xu¹ (1.The Univ. of Tokyo, 2.Nihon Univ., 3.JAMSTEC)

[18p-D62-17]

Vertical distributions of ¹²⁹I and insight of current in the Southern Canada Basin

○(M1)Xinru Xu¹, Yuanzhi Qi¹, Takeyasu Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Yuichiro Kumamoto² (1.Univ. of Tokyo, 2.JAMSTEC)

Au ナノ粒子を内包する SiO₂ フリースタンディング膜の作製と特性評価

Fabrication and characterization of free-standing SiO₂ films including Au nanoparticles

滋賀県立大院工¹, 滋賀県立大工², [○]久保田 真歩¹, 一宮 正義², 番 貴彦², 柳澤 淳一²

Grad. Sch. of Univ. of Shiga Pref.¹, Univ. of Shiga Pref.²

[○]Maho Kubota¹, Masayoshi Ichimiya², Takahiko Ban², Junichi Yanagisawa²

E-mail: on23mkubota@ec.usp.ac.jp

[背景と目的] 我々は金-シリコン (Au-Si) 共晶合金イオン源を用いたシリコン酸化膜 (SiO₂) へのイオン照射と大気中での熱処理により, SiO₂ 内部に埋め込まれた金 (Au) ナノ粒子を形成するプロセスを提案した. これまでは主にシリコン (Si) 基板上に形成された酸化膜を用い, 光反射スペクトル測定により Au ナノ粒子形成の評価を行ってきたが, この薄膜をフリースタンディング化することで光透過スペクトルの測定が可能となり, 応用への幅の広がりが期待できることから, 本研究では Au ナノ粒子を内包する SiO₂ 薄膜のフリースタンディング化を試みた.

[実験と結果] 100 nm の熱酸化膜が形成された両面研磨の Si (100) ウェハから切り出した試料に加速電圧 6 kV での Au-Si イオン源を用いたイオン照射と, 大気中での 1000 °C, 45 分間の熱処理とを行った. 熱処理前後で X 線回折測定と光反射スペクトルの測定 (Fig. 2.) を行い, Au ナノ粒子の形成を確認した. その後, 試料裏面にフォトリソグラフィにより直径約 3 mm の穴のあいた Al マスクを形成し, SF₆ ガスを用いたプラズマエッチングと KOH 水溶液によるウェットエッチングにより Si 基板のエッチングを行い, Au ナノ粒子を内包した SiO₂ 薄膜のフリースタンディング化を試みた. Fig.1.に透過光で撮影した試料の写真を示す. 一部に膜の破壊が見られるが, この試料膜に対して測定した反射または透過スペクトルを Fig. 3.に示す. エッチング前後の試料の反射スペクトルに大きな差が見られないことから, イオン照射面へのエッチングの影響はなかったことがわかる. 一方, エッチング後の透過スペクトルでは, Au ナノ粒子による表面プラズモン吸収を示すスペクトルのディップ位置に変化が見られた. これは, 基板裏面からの Si のエッチングで SiO₂ 膜をフリースタンドにする際に, Si だけでなく SiO₂ 膜も部分的にエッチングされることで Au ナノ粒子も除去され, 膜内部の Au ナノ粒子のサイズ分布に影響が出たためと推察される.

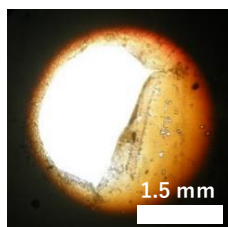


Fig. 1. Photo of free-standing SiO₂ film.

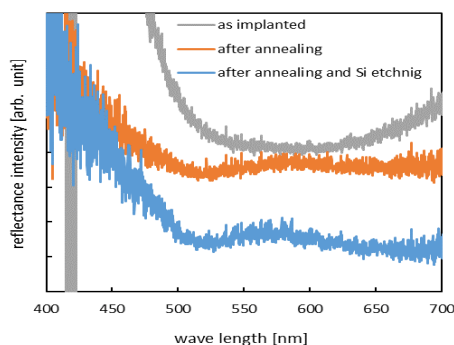


Fig. 2. Reflectance spectra of SiO₂ films on Si.

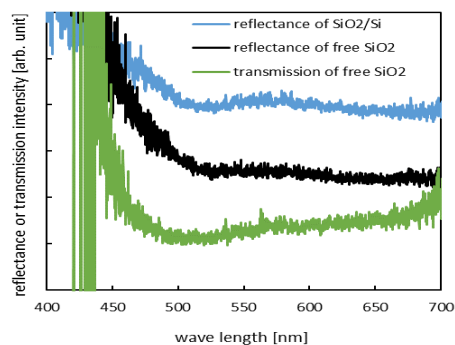


Fig. 3. Reflectance or transmission spectra of SiO₂ films.

反応性ガス雰囲気下 GCIB 照射によるエッチングのガス分圧および基板温度依存性

Dependence of Reactive Gas Partial Pressure and Substrate Temperature on Etching by GCIB Irradiation under a Reactive Gas Atmosphere



兵庫県立大学工 〇(M1C)伊藤汰一,竹内雅耶,豊田紀章

Graduate School of Engineering, University of Hyogo,

〇Taichi Ito, Masaya Takeuchi, Noriaki Toyoda.

E-mail: ei24t004@guh.u-hyogo.ac.jp

我々の研究グループでは、反応性エッチングにおける新たな表面反応励起源として、ガスクラスタイオンビーム(GCIB)を検討してきた。これまで本研究室では、室温で反応性ガス雰囲気下での GCIB 照射による低損傷、高アスペクト比、高い選択比でのエッチングを検討してきた[1]。さらに基板を冷却することによって反応性ガスの吸着量が増加し、より高効率のエッチングが期待される。一方、反応性ガスを導入することにより GCIB と残留ガスとの衝突が増加し、GCIB のエネルギー損失が生じるため、エッチング効果が低減する可能性がある。したがって最適な反応性ガス分圧と基板温度を決める必要がある。そこで、本研究では金属膜のエッチング量の反応性ガス分圧と基板温度依存性について検討を行った。

本研究では、Fig.1 に示す低温での GCIB 照射が可能な装置を用いた。試料には Si 基板上に成膜した膜厚 500Å の Co 膜を使用し、反応性ガスとして酢酸分子を用いた。この Co 膜に対し、O₂-GCIB を加速電圧 5kV、イオン照射量 5×10^{15} ions/cm² で照射し、酢酸分圧を $2 \times 10^{-5} \sim 2.5 \times 10^{-4}$ Torr まで変化させるとともに、基板温度を -60 から 25℃まで変化させ、エッチング量を測定した。その結果を Fig.2 に示す。Fig.2 より、基板温度 -60℃では、反応性ガス分圧が増加することによって、エッチング量が低下する。これは、残留ガスが増加することで GCIB のエネルギーが低下したためと考えられる。また、基板を冷却することによって同じ分圧であっても、エッチング量が増大することを確認した。反応性ガス分圧を低くして GCIB との衝突を減らしつつ、基板冷却によって反応性分子の吸着を促進することにより、エッチング量を増大させることが可能であることが分かった。講演では他の材料でのエッチング効果や、XPS や AFM を用いた表面状態についても報告する予定である。

※本研究はキオクシア（株）奨励研究の助成を受けたものです。

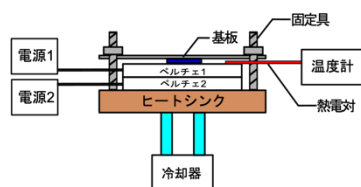


Fig.1 Overview of low-temperature GCIB irradiation equipment

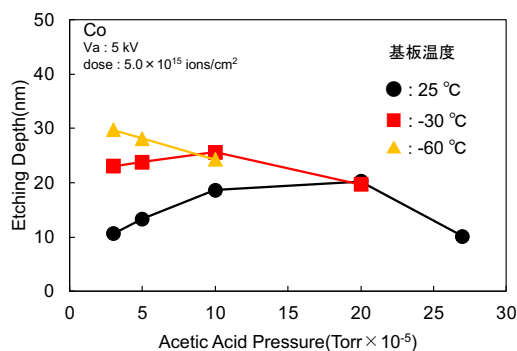


Fig.2 Partial pressure dependence of etching depth of Co film

[1]豊田紀章,応用物理,90,239-243(2021)



中性ガスクラスタービームを用いた Cu 膜のドライエッチング

Dry Etching of Cu films by neutral cluster beam

兵庫県立大学工[○](M1C)池田圭佑, 田中秀幸, 竹内雅耶, 豊田紀章

Univ. of Hyogo, Keisuke Ikeda, Hideaki Tanaka, Masaya Takeuchi, Noriaki Toyoda

E-mail: ei24a003@guh.u-hyogo.ac.jp

近年の半導体製造において、高精度かつ均一性の優れたエッチング手法として原子層エッチング(Atomic Layer Etching, ALE)が注目されている。本研究室では、通常 ALE で使用されるプラズマの代わりに GCIB(Gas Cluster Ion Beam)を用い、低エネルギーかつ低温での表面反応促進効果を活用し、ハロゲンフリーで ALE を実現できることを報告してきた[1]。しかし GCIB は高電圧かつ多くの真空ポンプが必要であり、また比較的低スループットなどの問題がある。

そこで、我々は中性ガスクラスタービーム GCB(Gas Cluster Beam)を用いた反応性エッチングを検討している。これまで、酸素 GCB による表面酸化と溶液による除去を繰り返すことにより擬似的な ALE が可能なことを示してきた[2]。本研究では溶液を用いず、GCB 照射と気相中での反応性分子供給によるエッチングについて検討を行った。

図 1 に GCB を用いたエッチングの概要を示す。ノズル中に高圧の酸素ガスを導入し、真空中に噴出させることにより中性クラスタービームを形成する。チャンバー内には反応性ガスを供給することの出来るラインが設けられており、反応性ガス分圧を調整しながら表面吸着させる。さらに、VUV 光源も設置されており、表面反応を促進させることが可能である。図 2 に、酢酸雰囲気と O_2 -GCB 照射による Cu 薄膜のエッチング量の基板温度依存性を示す。GCB が直接照射されている軸上照射部分では基板温度上昇とともにエッチング量が増大するが、残留ガスの曝露のみである軸外照射部分ではエッチングが観測できなかった。このことから、中性ガスクラスターに非常に強い指向性が有り、モノマーに比べて大きなエネルギーを与えることにより表面反応を促進していると考えられる。

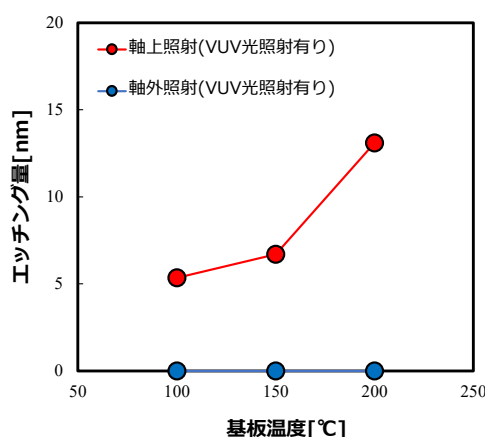
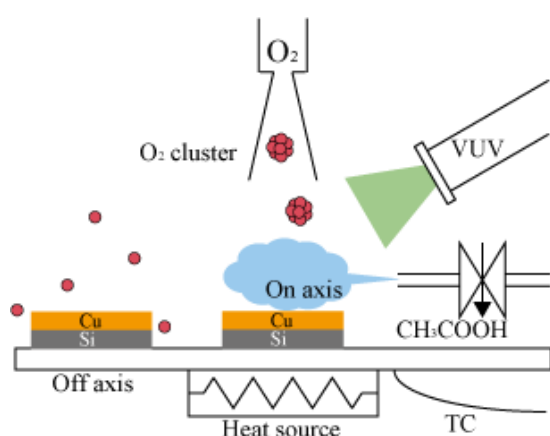


図 1 Cu 薄膜の GCB によるエッチングの模式図

図 2 Cu 薄膜のエッチング量の温度依存性

[1]N.Toyoda et.al., J. Phys. D : Appl. Phys. 50, 184003 (2017).

[2]池田圭佑, et. al., 応用物理学会 2024 年春季講演会 24p-12B-13

X-ray PEEM 測定用液体セルに向けた GCIB 照射による極薄 SiNx メンブレンの応力制御 Stress control of ultrathin SiNx membrane by GCIB irradiation for PEEM measurement liquid cell

兵庫県大工¹, ○竹内雅耶¹, 豊田亜里紗¹, 豊田紀章¹

Grad. school of Eng., Univ. of Hyogo¹, ○Masaya Takeuchi¹, Arisa Toyota¹, Noriaki Toyoda¹

E-mail: m_takeuchi@eng.u-hyogo.ac.jp

【序論】 近年、燃料電池は脱炭素社会実現のキーデバイスとして注目されている、大量の水素を発生するシステムが必要となる。水素はアルカリ性電解液を電気分解することで発生できるが、このとき発生した水素バブルがアノード電極に付着し、その生成効率が大幅に低下する¹。我々は、この水素バブル発生メカニズム解明のため、X線光電子顕微鏡 (X-ray PEEM) を用いた電極-バブル界面の測定を検討している。その測定は真空中で行われるため、液体は Fig. 1 に示す TEM window chip を用いた“液体セル”に封止される。この SiNx メンブレン (光電子透過窓) は、Si 基板上に SiNx 膜を形成しその後バックエッチングすることにより作製されるが、SiNx 膜成膜時に発生した残留応力によりその形状は湾曲する。このことは PEEM イメージの歪曲を引き起こす。一般的に薄膜の応力制御には単一分子のイオンビームが用いられるが、1 気圧以上の耐圧性を必要とするシングルナノオーダーの極薄 SiNx メンブレンに照射損傷が入り、その耐圧性は損なわれる。そこで本研究では、低損傷照射効果を示すガスクラスターイオンビーム (GCIB) を用いた SiNx メンブレンの応力制御を検討する。

【実験・結果】 TEM window chip (SiMPore, Inc.) の表面形状は、光干渉計 (Zygo New view 6300) で行われた。この時の SiNx メンブレンの膜厚は 11-12 nm、面積は 25 μm 角である。Fig. 2(a) はオリジナルの SiNx メンブレンの高さ分布を示している。メンブレン領域の中心部でその高さは、SiNx/Si 領域に比べて、約 60 nm 高くなっていることが分かる。これは SiNx 成膜時に生じた残留応力に起因する。我々は、このメンブレンに Ar-GCIB (kinetic energy; 5 keV, dose; 2×10^{13} ions/cm²) を照射した。その高さ分布を Fig. 2(b) に示す。メンブレン全体が、未照射 SiNx/Si に比べて、30 nm 程度の高さが低下していることを確認した。先行研究では、SiNx 膜への Ar plasma 照射により、Si-N 結合の切断が生じ酸化層が形成されることが報告されている²。また、SiNx 膜へ酸素プラズマを照射することにより、圧縮応力がかかることも報告されている³。上記より、Ar-GCIB 照射により SiNx メンブレンの酸化層が形成され、それによる圧縮応力の発生によりメンブレンの高さが変化したと考えられる。講演では、そのメカニズムの詳細について議論する。

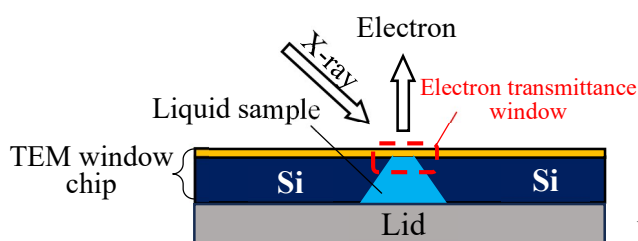


Fig. 1 Schematic of liquid cell

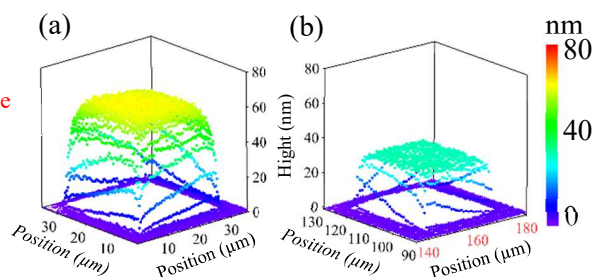


Fig. 2 Three-dimensional image of (a) pristine and (b) Ar-GCIB irradiated SiNx membrane

【謝辞】 本研究は JSPS 科研費 23K13236 の助成を受けたものです。

[1] H. Ikeda, R. Misumi, Y. Nishiki, Y. Kuroda, S. Mitsushima, *Electrochimica Acta*, **430**, 141053, 2022.

[2] T. Hamano and K. Eriguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **57**, 06JD02, 2018.

[3] N. Luhmann et. al., *Appl. Phys., Lett.*, **111**, 063193, 2017.



自立グラフェン膜への水クラスターイオンビーム照射効果 Effects of water cluster ion beam irradiation on free-standing graphene

兵庫県大工¹, NPO 分析産業人ネット², ^{○(MCI)} 諸葛 亮佑¹, 盛谷浩右¹, 持地広造², 乾徳夫¹

Univ. of Hyogo¹, PAI-NET², ^{○(MCI)} Ryosuke Shokatsu¹, Kosuke Moritani¹, Kozo Mochiji², Norio Inui¹

E-mail: ej24b017@guh.u-hyogo.ac.jp

1. 背景

グラフェンは2次元(2D)結晶構造を持ち、高い強度、高い透過率、熱伝導性、電子移動度を持つことから、より薄く、より高速な電子デバイスを実現するための理想的な材料と考えられている。しかし、理想的な構造的・機能的性能を実現するためには、表面の清浄化と機械的頑強性が必要となるが、溶剤洗浄ではすべての汚染物質を除去することはできず、加熱による脱離は熱変形を引き起こす可能性がある。クラスターイオンビームは、グラフェンのような超薄膜サンプルを室温において非破壊でクリーニングできる可能性がある。われわれはこれまでに、Ar クラスターイオンビームを用いて銅基板上のグラフェン膜をクリーニングし、後方散乱 Ar クラスターの解離比からそれをプロービングする方法を提案してきた[1]。1原子当たり数 eV ($E/n < 5\text{eV}$) の運動エネルギーで固体に衝突した Ar_n^+ は、衝撃により Ar_2^+ や Ar_3^+ などの小さなクラスターイオンとなって後方散乱する。このとき、解離比が固体の機械的特性に依存するため、解離比の変化から表面状態の変化をプローブすることができる。この手法を用いれば、巨大クラスターイオンビームを用いて、グラフェンのような超薄膜サンプルの表面状態をモニターしながら室温で非破壊クリーニングできる可能性がある。本研究では、水クラスターイオンビームを銅グリッド上に成膜した自立グラフェン膜に照射し、飛行時間型二次イオン質量分析法 (ToF-SIMS) を用いて、ビーム照射下における自立グラフェンの破壊特性を実験的に観察した。

2. 実験

ToF-SIMS 測定は J105 (Ionoptika Ltd, UK) を用いて行った。 $n=20\text{K}$ と 31K の水クラスター(H_2O) $_n^+$ を 70keV で加速させ、銅の TEM グリッドに支持された自立グラフェンに照射した。照射した各クラスターの E/n は、 $n=31\text{K}$ で 2.26eV 、 $n=20\text{K}$ で 3.50eV である。

3. 結果・考察

図(a),(b)は(H_2O) $_{31\text{K}}^+$ 、(c),(d)は(H_2O) $_{20\text{K}}^+$ クラスター照射時の二次イオン画像である。両 E/n において、イオン量 1.2×10^{13} (ions/cm²) でグラフェンの残存が確認された。一方、イオン量 2.4×10^{13} (ions/cm²) では、(H_2O) $_{20\text{K}}^+$ ビーム照射下ではグリッドのみが観察され、グラフェンが破壊されたことが示された。しかし、(H_2O) $_{31\text{K}}^+$ ビーム照射下ではグラフェンに変化は見られなかった。この結果は、水クラスター衝突による自立グラフェン破壊の閾値エネルギーは $2.26 \sim 3.50\text{eV}$ にあることを示唆している。

4. 謝辞

SIMS 測定を実施して頂いた IONOPTIKA 株式会社の佐野奈緒子博士に感謝申し上げます。

5. 参考文献

[1] K. Moritani, S. Houzumi, K. Takeshima, N. Toyoda, K. Mochiji, J Phys Chem C 112 (2008) 11357–1136

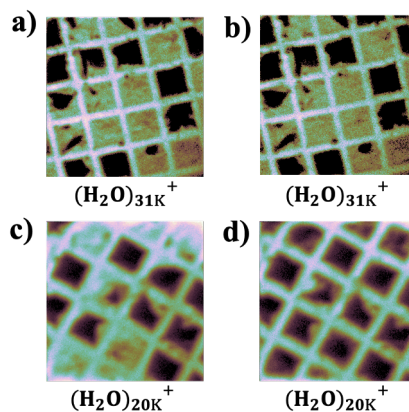


Fig. Secondary ion image of free-standing graphene supported on a copper grid during (H_2O) $_n^+$ cluster ion irradiation at 70kV with $n=31\text{K}$ for (a) and (b), $n=20\text{K}$ for (c) and (d). Ion fluence is 1.2×10^{13} ions/cm² for (a) and (c), 2.4×10^{13} ions/cm² for (b) and (d).

CID における有機分子解離メカニズムに関する研究

The Study of the Fragmentation Mechanism of Organic High Mass Molecules in CID

京大院工, [○] (M1) 西坂 光貴, 瀬木利夫, 松尾二郎

Graduate School of Engineering, Kyoto Univ., [○]Koki Nishisaka, Toshio Seki, Jiro Matsuo

E-mail: nishisaka.koki.35x@st.kyoto-u.ac.jp

タンデム質量分析法 (MS/MS) は、試料分子イオンから特定の質量電荷比 m/z をもつ前駆イオンを質量分離し、これを解離させて生成したプロダクトイオンの m/z スペクトルを得る手法である。前駆イオンの解離法としては、イオンに速度を与えて不活性ガスと衝突させる衝突誘起解離 (Collision-Induced Dissociation; CID) が最も主流である。MS/MS は構造異性体を多くもつ有機分子の構造決定などによく用いられるが、その際に CID におけるイオン解離過程が測定結果に影響する。検出されるプロダクトイオンの種類や収量は前駆イオンの物性や不活性ガスとの衝突エネルギーによって大きく変化するため、CID でのイオン解離メカニズムの解明が、MS/MS を利用した物質同定の精度向上のために必要である。

本研究で使用した MS/MS 分析装置の概要を示す (Fig. 1)。試料に照射する Ar ガスクラスターイオンビームは、スパッタされる分子イオンの解離を抑制する効果をもつ。質量分析計としては、四重極 (Q) による質量分離と飛行時間型質量分析計 (TOF) によるスペクル取得を組み合わせた QTOF-MS を用いた。前駆イオンには Q を通過した直後に加速電圧 E をかけ、衝突室内の Ar ガスと衝突させた。分析試料には有機分子の中でも構造が単純な脂肪酸であり、不飽和度がそれぞれ 0 と 1 であるステアリン酸 $C_{18}H_{36}O_2$ とオレイン酸 $C_{18}H_{34}O_2$ を選んだ。これらとトリフルオロ酢酸セシウム CsTFA を混合した試料を MS 測定すると、それぞれの脂肪酸から H^+ が 1 個脱離し Cs^+ が 2 個付加した $[M - H + 2Cs]^+$ が検出された。これを前駆イオンとし、CID 衝突エネルギー E を変化させながら MS/MS 測定を行った。

$E = 50\text{eV}$ における測定結果を Fig. 2 に示す。ステアリン酸のスペクトルは、 E の値を上げても $[M - H + 2Cs]^+$ と Cs^+ のピークしか示さなかった。これは、前駆イオンから Cs 原子単体が Cs^+ として脱離することで、ほぼ全てのイオンが正電荷を失い検出不可能となったことを示している。一方でオレイン酸のスペクトルからは、 $E = 30, 40, 50\text{eV}$ において $m/z = 50 \sim 150$ の炭化水素イオンによるピークが複数確認された。これは、オレイン酸が Cs 原子を含まないフラグメントイオンを生成することができ、その解離過程は炭素間二重結合によって促進されていることを示唆している。

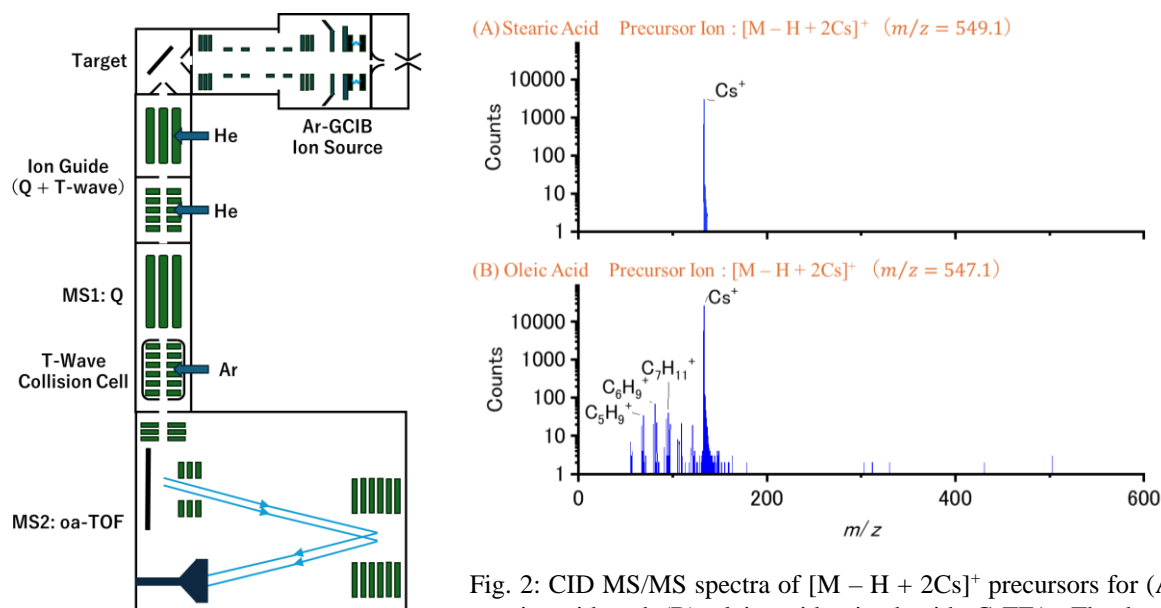


Fig. 1: Gas cluster SIMS system combined with a QTOF-MS

Fig. 2: CID MS/MS spectra of $[M - H + 2Cs]^+$ precursors for (A) stearic acid and (B) oleic acid mixed with CsTFA. The beam current, measurement time and collision energy in CID are 150pA, 50s and 50eV, respectively.

THz 加速のための狭線幅差周波光源開発

Narrowband differential frequency light source for THz acceleration

○竹家 啓^{1,2}, Vincent Yahia^{1,2} 石月 秀貴^{2,1}, 平等 拓範^{2,1}IMS¹, RIKEN², ○Kei Takeya^{1,2}, Vincent Yahia^{1,2}, Hideki Ishizuki^{2,1}, Takunori Taira^{2,1}

E-mail: takeya@ims.ac.jp

近年、テラヘルツ(THz)波の発生強度が増加し、高エネルギー物理での利用可能性が注目されている[1]。そのためには波長 1.5mm かつ mJ 以上、<GHz の狭線幅の THz 波が求められるため、高強度の THz 波発生技術が必須となる。差周波波長変換 (DFG) はそのような THz 波を発生させる有望な手法であるが、狭線幅の高強度二波長光の発生とデバイスの耐久性が課題である。そこで我々は解決策として、縮退条件下でシングル波長光を生成する縮退型光パラメトリックシステム (OPO) と Volume Bragg Grating (VBG) を使用した光学系で狭線幅二波長光の発生と増幅を試みた[2]。

Nd:YAG Micro MOPA
をポンプ光源とし、
PPMgLN、40% 反射の
共振器ミラー、反射型
Volume Bragg Grating
(VBG)、温度コントロー
ラーを含むコンパクト

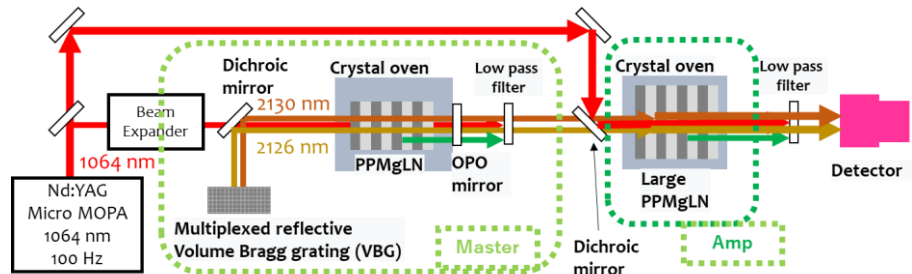


図 1. PPLN, OPO+VBG による差周波光源作成の光学系

な OPO を構築した (図 1)。VBG は反射型で 99% 以上の回折効率で、2126nm と 2130nm の二波長光を取り出すことが出来る。その二波長光を、増幅用の PPMgLN を用いて出力の増幅を行った。

PPMgLN 動作の最適温度を調べたのち、OPO 光学系による波長変換後の光をスเปアナで観測したところ二波長光の発生が観測された。この時のスペクトル幅は約 0.5nm、両波長の強度は約 2mJ であった。このことは、PPLN1 個と VBG から構成されるシンプルな増幅系において波長変換に利用可能な二波長光の取り出しが出来ることを示唆している。この二波長光を用いて THz 発生実験を行ったところ、検出器においてテラヘルツ波が検出された。さらに、PPMgLN による二波長光の増幅を行ったところ、1064nm 励起光の強度 (～12mJ) に応じて二波長光の増幅が 3 mJ まで観測された (図 2)。この結果は本手法がパワースケーリング可能な技術であることを示しており、今後の高強度 THz 光源の励起光として有望であることを示している。

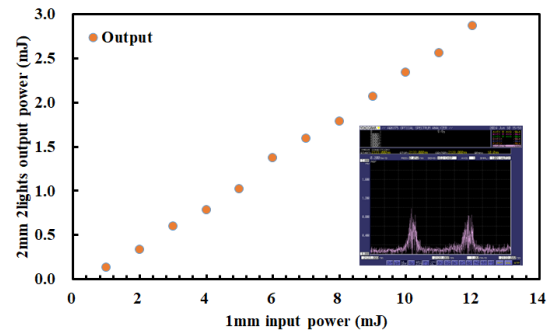


図 2. 二波長光の入出力特性。挿入図はスペクトラムアナライザからの信号

本研究の一部は、安全保障技術研究推進制度 JPJ004596、の支援を受けたものです。

[1] S. W. Jolly, N. H. Matlis, F. Ahr, H. Ishizuki, T. Taira, et al. *Nat Commun.* 10, 2591 (2019).

[2] K. Takeya, V. Yahia, H. Ishizuki, T. Taira, TILA-LIC1-03, OPIC TILA-LIC2024 (2024)

LiF 蒸着フィルムを用いた透過型検出器の検出効率向上

Improvement of detection efficiency for transmission detector using LiF-coating foil

京府大生命環¹, 京大院工² ○(M1)仙田 敬¹, (M2)藤井 晴也¹,
(M2)中溝 珠里², 間嶋 拓也², 安田 啓介¹

Kyoto Prefectural Univ.¹, Kyoto Univ.², °Haruya Fujii¹, Satoshi Senda¹,
Shuri Nakamizo², Takuya Majima², Keisuke Yasuda¹

E-mail: s824632012@kpu.ac.jp

全固体リチウムイオン二次電池 (ASSLB) は次世代の二次電池として大きな期待を受けている。電池の性能向上には、電圧印加時のイオンの詳しい挙動の理解が重要である。そこで我々は、ASSLB 内部のリチウムや他の元素の挙動を調べることを目的として飛行時間測定弾性反跳粒子検出 (TOF-ERDA) 測定装置の開発を行っている。TOF-ERDA 装置は 2 つの透過型検出器 (T1, T2)、1 台のシリコン半導体検出器 (SSD) で構成され、T1 と T2 で飛行時間、SSD でエネルギーを測定する。透過型検出器は炭素フィルム、マイクロチャネルプレート (MCP) 検出器、静電ミラーで構成されている。粒子がフィルムを通過する際に発生する二次電子を静電ミラーで偏向し、MCP 検出器で検出する。透過型検出器の検出効率は水素やリチウムなどの軽元素では 20%~60%程度と低くなっている。これまでの研究から、検出効率は炭素フィルム表面に絶縁物の薄膜を蒸着することにより向上することが知られている。本発表では、透過型検出器 T1 に用いる炭素フィルムにフッ化リチウム (LiF) を蒸着した際の水素の検出効率の向上について報告する。

測定で得られた水素の検出効率を Fig. 1 に示す。従来の測定で用いた厚さが $3.0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素フィルムを使用した場合の検出効率は水素のエネルギーが 0.7 MeV から 2.0 MeV の範囲で 10 % から 24 % であった。T1 に用いるフィルムを厚さが $3.0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素フィルムに厚さが $1.0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の LiF を蒸着したものに変更したところ、検出効率は平均で 1.8 倍向上した。この検出効率の向上の原因

として、フィルムに LiF を蒸着した影響と、蒸着によって膜厚が厚くなった影響が考えられる。本発表では厚さの影響を取り除いた LiF 蒸着の効果についても報告する予定である。

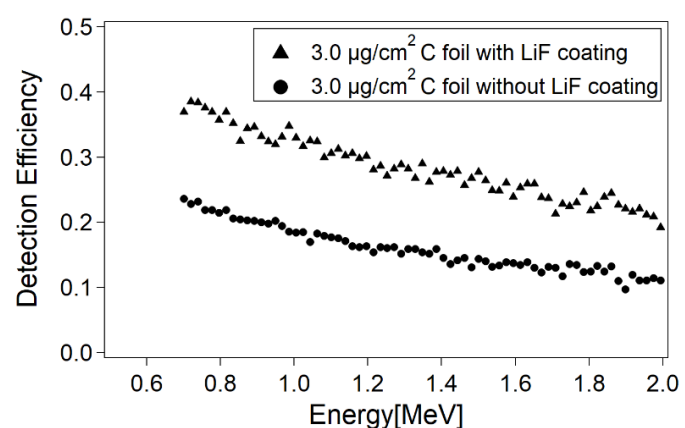


Fig.1 The detection efficiency for hydrogen.

**JAEA-AMS-TONO における
加速器質量分析装置に関する研究開発; 2024 年秋
Research and Development for Accelerator Mass Spectrometer
at JAEA-AMS-TONO; 2024**

日本原子力研究開発機構¹, 株式会社ベスコ², ビームオペレーション株式会社³,
○藤田奈津子¹, 神野智史¹, 南谷史菜¹, 三宅正恭¹, 松原章浩², 前田祐輔¹, 木田福香¹,
小川由美¹, 西尾智博², 大前昭臣³, 宇野定則³, 渡邊隆広¹, 木村健二¹, 島田耕史¹,
Japan Atomic Energy Agency (JAEA)¹, PESCO Co., Ltd.², Beam Operation Co., Ltd.³,
°Natsuko Fujita¹, Satoshi Jinno¹, Fumina Minamitani¹, Masayasu Miyake¹, Akihiro Matsubara²,
Fukuka Kida¹, Yusuke Maeta¹, Yumi Ogawa¹, Tomohiro Nishio², Akiomi Ohmae³, Sadanori Uno³,
Takahiro Watanabe¹, Kenji Kimura¹, Koji Shimada¹
E-mail: fujita.natsuko@jaea.go.jp

日本原子力研究開発機構東濃地科学センター土岐地球年代学研究所では、地質環境の長期安定性に関する研究における技術開発において、加速器質量分析装置 (Accelerator Mass Spectrometer : AMS) を用いた年代測定を実施している。AMS は希少放射性核種を対象とした超微量同位体比測定が可能な装置であり、当センターにおいても地質試料や地下水試料、考古学試料等の年代測定に取り組んでいる。現在当センターには AMS が 3 台あり、うち 2 台は年代測定の実試料測定用であり、もう 1 台が超小型 AMS の開発に向けた試験装置である。

実試料測定用の 2 台の AMS は JAEA-AMS-TONO-5MV (NEC 製 15SDH-2, 最大加速電圧 5.0 MV) と JAEA-AMS-TONO-300kV (HVE 製 4103Bo-AMS, 最大加速電圧 300 kV) であり、2 台とも、炭素-14 (¹⁴C), ベリリウム-10, アルミニウム-26, ヨウ素-129 の 4 核種を測定している。また 5MV の AMS ではこれら 4 核種のルーチン測定に加えて、地下水の年代測定に有用な塩素-36 の測定に向けた技術開発も実施している。具体的には妨害核種の硫黄の除去工程の検討をしており、前処理での除去と反応セルを用いた物理的な除去、検出器やビーム調整での除去を検討している。JAEA-AMS-TONO-300kV では 4 核種のルーチン測定に加えて、炭素試料のガスイオン源化の検討も開始した。超小型 AMS の開発に向けた試験装置 (最大引出電圧 40 kV, タンデム加速はなし) は ¹⁴C 測定用であり、イオンチャネリングを利用した AMS の同質量分子の新しい分別方法を実証するための装置である[1]。これまで ¹⁴C 測定実用化のための実証試験に向け、イオンチャネリングをさせる固体結晶に塩化カリウムを使用し、検出部において質量 14 の電流を計測した。今後も ¹⁴C のみの検出に向けて研究開発を行っていく予定である。発表では、それぞれの研究開発状況を報告する。

[1] 藤田 他, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会 シンポジウム, (2023) 17a-A304-5.

微量放射性炭素測定のための前処理技術の開発

Development of a small-scale sample pretreatment system for AMS radiocarbon dating

日本原子力研究開発機構¹, 株式会社ペスコ²

○(P) 南谷 史菜¹, 藤田 奈津子¹, 神野 智史¹, 西尾 智博², 渡邊 隆広¹

Japan Atomic Energy Agency (JAEA)¹, PESCO Co., Ltd.²

°Fumina Minamitani¹, Natsuko Fujita¹, Satoshi Jinno¹, Tomohiro Nishio², Takahiro Watanabe¹,

E-mail: minamitani.fumina@jaea.go.jp

加速器質量分析法 (AMS) による放射性炭素測定では、近年、測定試料量の微量化と迅速分析に関心が集まり、レーザーアブレーション法による局所領域からの試料分取技術や微量試料の効率的な測定に必要となるガスイオン源 AMS の技術改良が進められている。これらの技術開発によって樹木やサンゴの年輪試料から 100 マイクロメートル以下のスケールかつ 1 年単位での高時空間解像度分析が促進され、これまで困難であった微小試料のデータを報告できるようになってきた。とくに、炭素量で数十マイクログラムの微量試料で放射性炭素測定を行うためには、試料前処理における収率の改善と AMS に必要な測定ターゲット (グラファイトや鉄炭化物であるセメントタイト) の均質化が重要である。また、従来法であるグラファイト調製では 1 週間程度の作業時間が必要となり、時間的コストの発生や前処理作業時の炭素汚染が問題となっていた。

そこで日本原子力研究開発機構東濃地科学センター土岐地球年代学研究所では、レーザーアブレーションを用いたセル内完結型の前処理技術の開発およびセメントタイトによる微量試料調製法に着手した。レーザーアブレーションによる前処理では、サンプルセル内で試料を燃焼させるため炭素汚染の影響を軽減できるだけでなく、分析時間の短縮が期待される。試料から生成した二酸化炭素は、新規に当センターで構築予定のガスイオン源 AMS での測定を計画している。微量試料調製法では、新たにセメントタイトに最適な反応容器と反応炉、還元鉄 (鉄粉の種類や量、還元条件) を検討し、炭素量 100 マイクログラム以下での測定を予定している。2016 年以降に当センターで運用中の自動グラファイト調製装置 (IonPlus 社製 AGE3) による試料前処理法と比較し、本手法の性能評価を進める予定である。本発表では、これらの試料前処理システムの概要と成果を報告する。

都市大タンデムの現状 ～分析用ビームラインの状況～

Present states of TCU-Tandem - Current Status of Analytical Beamline -

都市大 °羽倉尚人

TCU °Naoto Hagura

E-mail: nhagura@tcu.ac.jp

東京都市大学・原子力研究所では、2018年5月から1.7MVペレトロン・タンデム加速器（都市大タンデム）^[1]を運用している。研究用原子炉「武蔵工大炉」が廃止措置段階に入ったため新たな教育・研究のための設備として導入された。荷電粒子線励起X線分光（EDS-PIXE）分析実験をスタートさせ、武蔵工大炉建屋のコンクリート^[2]や使用済燃料再処理プロセスにおけるマイナーアクチニド（MA）の回収に用いられる吸着剤^[3]、そのほか環境試料を主な分析対象としている。2021年からは学内の他学科の研究室との共同利用も開始しユーザーの拡大に向けた第一歩を踏み出している^[4]。本学や他大学の学部学生や大学院生を対象とした実験実習科目の一テーマとして教育利用を進めている。本報告では、当施設のタンデム加速器の主に分析用ビームラインの状況を報告する。

- [1] 羽倉尚人 ほか、日本原子力学会和文論文誌、Vol. 17、No. 3/4、pp. 111-117 (2018).
- [2] N. Hagura, et al., International Journal of PIXE, Vol. 28, Nos. 3 & 4, 77-84 (2018).
- [3] S. Watanabe, et al., Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B 477, 60-65 (2020).
- [4] 小森あかね ほか、放電学会年次大会、2021/12、B-2

東京大学 MALT の現状 - 2024 年秋 -**Current status of MALT, The University of Tokyo in the Fall 2024****東京大学¹ [○]山形武靖¹, 徳山裕憲¹, 土屋陽子¹, 戸谷美和子¹, Yuanzhi Qi¹, 松崎浩之¹****The Univ. of Tokyo¹, [○]Takeyasu Yamagata¹, Hironori Tokuyama¹,****Yoko sunohara Tsuchiya¹, Miwako Toya¹, Yuanzhi Qi¹ and Hiroyuki Matsuzaki¹****E-mail: yamagata@um.u-tokyo.ac.jp**

東京大学総合研究博物館タンデム加速器施設 MALT (Micro analysis laboratory, Tandem accelerator, The University of Tokyo)は米国 NEC 社製ペレトロン 5UD 加速器 (最大加速電圧 5MV) を運用しており、学内外を問わず研究・教育活動のための施設として用いられている。例年加速器運転時間のおよそ 3 分の 2 が加速器質量分析 (Accelerator mass spectrometry: AMS) マシンタイムに充てられている。AMS マシンタイムの他は NRA(Nuclear Reaction Analysis), ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis)を行なっている。現在ルーチン測定として AMS を行なっている核種は ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl と ^{129}I であり、 ^{41}Ca と ^{236}U の開発を行なっている。

2024 年度前期は共同利用として ^{10}Be -AMS (^{26}Al -AMS 2 課題を含む)が 15 課題、 ^{129}I -AMS が 4 課題、 ^{14}C -AMS と ^{36}Cl -MS が 1 課題と NRA が 5 課題、ERDA と PIXE がそれぞれ 1 課題、p-NRA とビーム利用が 2 課題の合計 29 課題が採択された。今期 ^{41}Ca -AMS の共同利用は申請されていないが、今後も性能向上の開発実験等を行っていく。

2023 年 2 月からインダクターからペレットチェーンに放電し、加速器が止まるトラブルが発生した。原因は 2 本あるチェーンを回すプーリーの片側に装着しているコンタクトバンドのはじがめくれ、インダクターと放電することとわかり、2024 年 4 月のメンテナンスで新品に交換したところトラブルは起きなくなった。10 月にメンテナンス停電があり、復旧の際に 2021 年末に起きたトラブルと同様の AMS 測定用の CAMAC モジュール ADC の故障が起きた。前回は中古品の購入等で修理が出来たが、今回は代替品が手に入る予定がなかったため、内部 IC を交換しテストした結果、復帰できた。2021 年末のトラブル時から出ていた ADC スペクトルのチャンネル飛び減少も無くなった。2024 年 5 月にビーム収束ができなくなるトラブルに見舞われた。ビームラインを解放しチェックすると入射系のアインツェルレンズに金属フレークが付着していた。おそらく MALT 特有の縦側ビームラインにおいて入射電磁石に析出した析出金属が落下してきたためと考えられる。その直後にイオン源でカソードが導通して測定ができなくなるトラブルが発生した。カソードディスクを保持するロッドの碍子にセシウムが付着し導通したと思われるため、アライメントを損ねない程度できる限りイオン源を分解し清掃した。トラブル続きでマシンタイムが逼迫しているが、ユーザーの希望するマシンタイムは確保し運営を行えている。本講演では 2024 年度の運営の現状と新規応用研究について報告する。

^{36}Cl の加速器質量分析における妨害同重体 ^{36}S のイオン源での抑制

Suppression of interfering isobaric ^{36}S in ^{36}Cl AMS at the ion source

筑波大 CRiES¹, 筑波大数物² ○笹 公和^{1,2}, 松村万寿美¹, 吉田哲郎¹, 高橋 努¹

CRiES, Univ. Tsukuba¹, Pure Appl. Sci., Univ. Tsukuba², ○Kimikazu Sasa^{1,2}, Masumi Matsumura¹,

Tetsuro Yoshida¹, Tsutomu Takahashi¹

E-mail: ksasa@tac.tsukuba.ac.jp

筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置では、宇宙線生成あるいは人為起源の極微量放射性核種の高感度検出について技術開発を進めている。高エネルギーに加速することで多核種の粒子識別に対応できるようになっており、これまでに ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{129}I の 6 核種について同位体比 $10^{-10}\sim 10^{-15}$ レベルでの検出が可能となっている^[1]。

^{36}Cl (半減期 30.1 万年)の加速器質量分析では、 AgCl から引き出した Cl^- を加速電圧 6.0 MV により加速して、ガス電離箱で検出をおこなっている。炭素フォイル ($3.6\text{ }\mu\text{g}/\text{cm}^2$) により荷電変換し、48 MeV の $^{36}\text{Cl}^{7+}$ を検出する^[2]。 ^{36}Cl は、妨害となる同重体の ^{36}S の混入により、AMS による測定が最も困難な放射性核種の一つである。硫黄そのものは環境中に存在しやすく、その除去を困難にしている。 ^{36}S を分離・識別するために、これまでに、Cs スパッタリング負イオン源からのビーム自体に含まれる ^{36}S を低減する方法と、検出器に入射する ^{36}S のスペクトルを分離・識別する方法が研究されている^[2,3]。本研究では、Cs スパッタリング負イオン源から放出される ^{36}S を低減するために、カソードホイールの改良について検討を進めた。 ^{36}Cl の加速器質量分析では、試料形態として塩化銀 (AgCl) を用いる。 AgCl を装填する試料搭載ホルダーについて、 AgBr 粉末で充填した銅ホルダーを使用した結果、 ^{36}S の混入は少なかった。 AgBr には、直径 1 mm の穴を開けて AgCl を装填する。サンプル量が多い場合は、 AgCl をカソードの全面に配置する方法が ^{36}S の混入が最も少なかった。本研究では新たに、厚さ 0.50 mm の Ta プレートで Al ホイールディスクの表面を覆うことで、 ^{36}S の混入抑制を試みた。測定結果として、Ta プレートカバーの取り付けにより、 ^{36}S の寄与は約 50 分の 1 に減少した。本発表では、6 MV タンデム加速器を用いた ^{36}Cl の AMS 検出技術の進展において、妨害同重体 ^{36}S のイオン源での抑制方法の検討結果について報告する。

謝辞 本研究は、JSPS 科研費（基盤研究(B) 22H02001, 基盤研究(A) 23H00135, 基盤研究(S) 20H00173）の支援を受けて実施している。

References

- [1] K. Sasa et al., (2018) The 6 MV multi-nuclide AMS system at the University of Tsukuba, Japan: First performance report, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, 437, 98-102.
- [2] S. Hosoya, K. Sasa et al., (2018) Isobar suppression for ^{36}Cl accelerator mass spectrometry at the University of Tsukuba, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, 438, 131-135.
- [3] 笹 公和 他, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, 8a-Z25-3, 2020.

ハイマツ試料中放射性炭素濃度の年変動に関する研究 VI

Research of annual variations of ^{14}C concentrations in pinus pumila VI

山形大 AMS センター¹, 山形大理², 武蔵美³

○武山 美麗^{1,2}, 森谷 透^{1,2}, 櫻井 敬久², 宮原 ひろ子³, 門叶 冬樹^{1,2}

Center for AMS, Yamagata Univ.¹, Fac. of Sci., Yamagata Univ.², Musashino Art Univ.³

○Mirei Takeyama^{1,2}, Toru Moriya^{1,2}, Hirohisa Sakurai², Hiroko Miyahara³, Fuyuki Tokanai^{1,2}

E-mail: takeyama@sci.kj.yamagata-u.ac.jp

放射性炭素 (^{14}C) は、宇宙線と大気中の窒素 (^{14}N) との相互作用により生成され、直ちに酸化されて二酸化炭素 ($^{14}\text{CO}_2$) となり、大気中の二酸化炭素と混合して地球規模の炭素循環に取り込まれるため、大気中の ^{14}C 濃度は太陽活動の変動や宇宙線増加現象を反映する。したがって年代の判明している古木試料の ^{14}C 濃度を高精度に測定することで、過去の太陽活動の周期性や太陽フレアに起因する宇宙線増加現象を調べることができる[1-4]。しかしながら、植物が光合成により取り込む大気中 (対流圏) の ^{14}C 濃度は、地球の炭素循環の影響により ^{14}C 生成から時間差が生じ、その濃度変動は地球の成層圏で生成された ^{14}C 量の変動の 1/100 以下まで減衰する。従って ^{14}C をプローブとして過去の宇宙線強度変動や太陽活動を調べるためには、太陽黒点数や二次宇宙線の量が正確に観測されている現代の試料を用いて、植物中の ^{14}C 濃度の時間と変動の依存性を調べることが重要となる。

そこで、我々は試料中の ^{14}C 濃度変動と宇宙線強度変動、および太陽活動の関係を調べ、地球炭素循環の影響を評価することを目的として、乗鞍岳および蔵王山の高山帯に生息するハイマツの球果と葉 (図 1) を 2018 年から継続的に採取し、 ^{14}C 濃度測定を行っている。また、化石燃料の影響を比較するために、東京都および山形県天童市の市街地からアカマツ試料を採取し、同じく ^{14}C 濃度測定を行っている。試料の ^{14}C 濃度測定には、山形大学高感度加速器質量分析センター (YU-AMS) に設置された AMS システムおよびグラフィット作製システムを使用した。図 2 に各試料の採取年に対する ^{14}C 濃度 ($\Delta^{14}\text{C}$) と太陽黒点数[5]を示す。乗鞍岳と蔵王山で採取したハイマツ試料の $\Delta^{14}\text{C}$ は 2018 年から 2023 年にかけて全体的に減少傾向を示しており、1949 年から 1962 年に行われた大気圏核実験の影響がいまだに残っていると考えられる。本講演では、より詳細な測定結果について報告する。



図 1. 試料に用いたハイマツの球果(左)と葉(右)

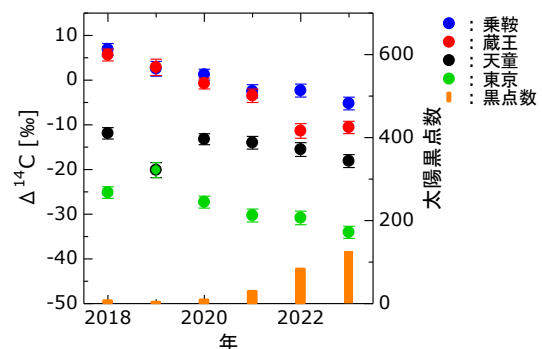


図 2. ハイマツ・マツ球果の採取年に対する $\Delta^{14}\text{C}$ 濃度と太陽黒点数

- [1] F. Miyake et al., Nature, 486, 240-242 (2012).
- [2] F. Miyake et al., Geophys. Res. Lett., 48, e2021GL093419 (2021).
- [3] H. Miyahara et al., Sci. Rep., 11(1), 5482-5482 (2021).
- [4] H. Miyahara et al., Geophys. Res. Lett., 49, e2021GL097201 (2022).
- [5] WDC-SILSO, Royal Observatory of Belgium, Brussels.

自然環境におけるヨウ素同位体システムの研究 3

Study on natural iodine isotope system 3

東大 MALT, °松崎 浩之, 戸谷 美和子, 齊 遠志, 山形 武靖

MALT, Univ. of Tokyo, °Hiroyuki Matsuzaki, Miwako Toya, Yuanzhi Qi, Takeyasu Yamagata

E-mail: hmatsu@um.u-tokyo.ac.jp

ヨウ素同位体 ^{129}I (放射性同位体: 半減期 1570 万年) および ^{127}I (安定同位体) により、ヨウ素同位体システムが形成される。自然環境においては、大気中においては、キセノン (Xe) と宇宙線との相互作用 ($^{129}\text{Xe}(n, p)^{129}\text{I}$) で、海水中や地殻中では天然ウラン 238 の自発核分裂によって、ヨウ素 129 は生成する。生成したヨウ素 129 は、地球表層環境中のヨウ素の生物地球化学循環に入る。これまで、大気・表層海水・海洋 (深層)・堆積物/地殻の 4 つのボックスモデルにより、それぞれのボックスにおける定常的なヨウ素同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) を検討してきた。各ボックス中のヨウ素インベントリの見積もりに不確定性がある他、ボックス間のヨウ素交換速度も不明であることから、ヨウ素同位体システムを完全に解明したとまではいえないが、それでも、不自然でないパラメーターの選択により、海洋中の平衡同位体比と堆積物中の平衡同位体比で異なる値を持つことも可能であることが示された。

今後、モデルを精緻化するために重要なポイントとして、宇宙線生成核種生成率の緯度依存 (Fig.1) の考慮が挙げられる。これまでは、大気全体を積分し平準化した生成率を使っていたが、大気中ヨウ素の混合の様子によっては、大気中ヨウ素 129 濃度の緯度依存性が残る可能性もある。

また、堆積物中や地殻中のウラン濃度も重要なパラメーターであるが、これまでは非常に大雑把な平均値を用いてきた。堆積物や岩石中のウラン濃度データを精査し、改善する必要がある。

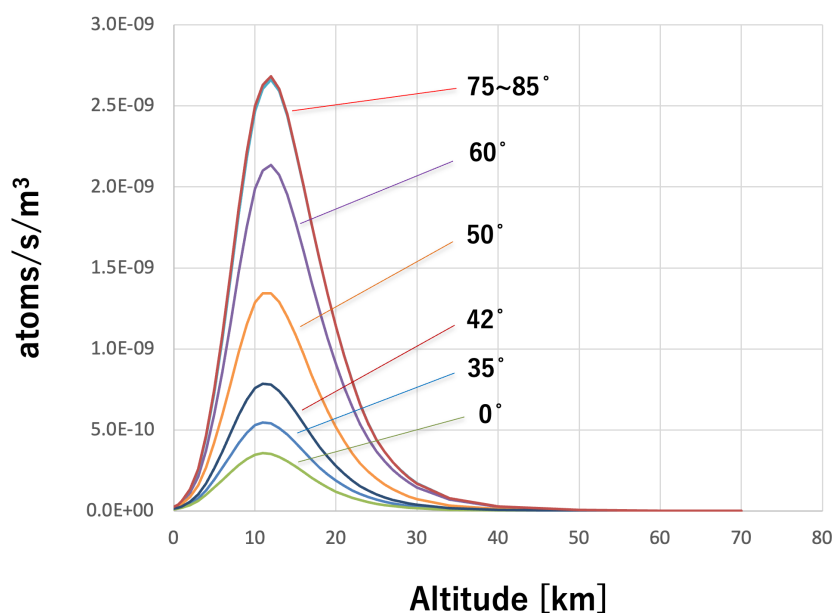


Fig. 1. The latitude dependency of the production rate of ^{129}I as functions of the altitude.

Temporal Changes of Iodine-129 in the Canada Basin Over the Past Decade

The Univ. of Tokyo ¹, Nihon Univ. ², JAMSTEC ³, °(P) Yuanzhi Qi¹, Takeyasu Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Hisao Nagai^{1,2}, Yuichiro Kumamoto³, Qiuyu Yang¹, Xinru Xu¹

E-mail: yuanzhiqi@um.u-tokyo.ac.jp

The Arctic, known for its high sensitivity to global climate change, has experienced a temperature increase surpassing four times the global average rate since the industrial era began. This warming trend has coincided with the northward encroachment of warmer and saltier Atlantic waters into the Arctic Ocean, a phenomenon termed "atlantification". These changes have led to significant reductions in Arctic sea ice and alterations in seawater thermohaline structure, potentially impacting Arctic ocean currents. Understanding the response mechanisms of these currents to climate change is crucial for comprehending and addressing the broader impacts of global warming. Iodine-129 (¹²⁹I), released in substantial quantities directly into the North Atlantic from nuclear fuel reprocessing plants (NFRPs), is transported into the Arctic via the Fram Strait and Barents Sea, making it an ideal tracer for tracking Arctic currents. While numerous studies have utilized ¹²⁹I to investigate ocean currents in the Eurasian Basin, research in the Canada Basin, which also features complex current patterns, remains limited.

This study presents a decade-long analysis of temporal changes in ¹²⁹I concentrations at two stations (NAP, 74.5 °N, 162.0 °W; CB, 72.5 °N, 155.0 °W) within the Canada Basin from 2013 to 2023. Our findings reveal a diminishing influence of Atlantic water on the surface of the Canada Basin over this period. In the early 2010s, ¹²⁹I concentrations in the intermediate layer at both stations remained similar, indicating a shared source. However, by the late 2010s, the concentration of ¹²⁹I in the intermediate layer at the NAP station significantly surpassed that at the CB station, suggesting a shift in ocean currents potentially linked to changes in the Arctic Oscillation and atlantification.

Vertical distributions of ^{129}I and insight of current in the Southern Canada Basin

The Univ. of Tokyo ¹, JAMSTEC ², °(P) Xinru Xu¹, Yuanzhi Qi¹, Takeyasu

Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Yuichiro Kumamoto²

E-mail: xuxinru0426@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

Human activities, particularly nuclear fuel reprocessing and nuclear weapons testing, are the primary sources of ^{129}I in the marine environment. The Sellafield facility in the UK and the La Hague facility in France are the predominant contributors to ^{129}I discharges into the ocean. ^{129}I subsequently travels through the North Atlantic Ocean to the Arctic Ocean, eventually reaching the Canadian Basin. The current system in the Canadian Basin is intricate and intertwined with climate change. ^{129}I has been widely utilized in studies of ocean currents and water mass origins, providing significant insights into current systems.

This study is based on the most recent data collected by our laboratory in 2023. This study investigated two depth profiles at stations St.14 (72.4°N, 155.4°W) and St.32 (74.0°N, 162.0°W) in the region. Vertically, the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio initially decreased from the surface layer to a minimum value of 2×10^{-10} , then increased to a maximum value of 138×10^{-10} (Figure 1). It remained relatively stable within a depth range to 1000 m, before gradually decreasing with further depth (Figure 1). Based on these ratio data, the water source composition is categorized into a freshwater mixed layer (0–20 m), Pacific-origin water (20–100 m), Atlantic-origin water (200–1000 m), and bottom aged water mass (near the seabed). Vertical mixing occurs between these water masses. Further analysis of the Atlantic-origin water layer revealed a distinct peak in the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio at approximately 250 m (Figure 2). Previous studies have identified two primary currents from the Atlantic Ocean: the Fram Strait Branch Water (FSBW), with a core at around 400 m, and the Barents Sea Branch Water (BSBW), with a core at about 800 m. However, this observed peak at 250 m is not attributable to either FSBW or BSBW and exhibits a higher signal than both. This suggests the possibility of an unknown ^{129}I source in the Arctic or an unrecognized Atlantic Ocean current carrying a high ^{129}I signal.

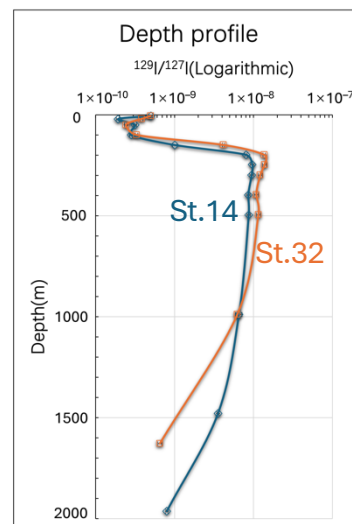


Figure 1. Depth profile of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in logarithmic form

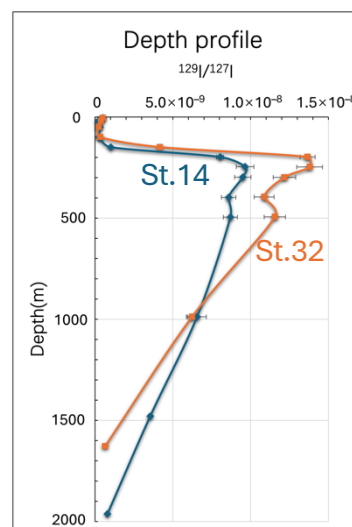


Figure 2. Depth profile of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in linear form

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.2】 3.2 情報フォトンクス・画像工学、4.4 Information Photonicsのコードシェア

[16p-A37-1~11] CS.2 3.2 情報フォトンクス・画像工学、4.4 Information Photonicsのコードシェア

[16p-A37-1]

[JSAP-Optica Joint Symposia Invited Talk] Incoherent Coded Aperture Correlation Holography

○Yuhong Wan¹, Tianlong Man¹, Wenxue Zhang¹, Minghua Zhang¹, Hongqiang Zhou¹ (1.School of Physics and Optoelectronic Engineering, Beijing University of Technology)

[16p-A37-2]

Enhanced live cell imaging through polarization digital holographic microscope

○(D)Shivam Kumar Chaubey¹, Mohit Rathor¹, Rupen Tamang², Biplob Koch², Rakesh Kumar Singh¹ (1.Dept. of Phy. IIT BHU, 2.Dept of Zoology, BHU)

[16p-A37-3]

Quantitative Zernike Phase-Contrast Microscopy with an Untrained Neural Network

○(D)Zinan Zhou¹, Keiichiro Toda¹, Rikimaru Kurata², Kohki Horie¹, Ryoichi Horisaki², Takuro Ideguchi¹ (1.UTokyo (Science), 2.UTokyo (IST))

[16p-A37-4]

Generation of structured light beams on HOPS and HyPS using multiplexed holograms

○(D)SUMIT KUMAR SINGH¹, Kenji Kinashi¹, Naoto Tsutsumi¹, Wataru Sakai¹, Boaz Jessie Jackin¹ (1.Kyoto Inst. of Tech.)

[16p-A37-5]

[JSAP-Optica Joint Symposia Invited Talk] Ultra-wide field-of-view optical focus control with high-speed complex wavefront shaping

○Atsushi Shibukawa¹ (1.Hokkaido Univ.)

[16p-A37-6]

単一画素計測を用いた波面計測における輝点位置の抽出

○(M2)小林 直弘¹、仁田 功一¹ (1.神戸大院システム情報)

[16p-A37-7]

1点読み出し時間ドメイン単画素イメージングによるリアルタイム像再生

○槻 凌多¹、深津 晋¹ (1.東京大院総合文化)

[16p-A37-8]

スペクトル符号化法による2次元ファイバイメージング-多芯化の効果-

○(M2)野々目 久祥¹、小山 卓耶²、大嶋 祐介²、片桐 崇史² (1.富山大医薬理工、2.富山大工)

[16p-A37-9]

マルチスポット照明を用いた散乱体深部蛍光イメージング

○(M1)黒田 浩太¹、小山 卓耶²、大嶋 佑介²、片桐 崇史² (1.富山大理工、2.富山大工)

[16p-A37-10]

モーションレスオプティカルスキニングホログラフィにおける多波長イメージングのための照明光変調パターン設計の検討

○最田 裕介¹、西本 篤生¹、米田 成^{2,3}、野村 孝徳¹ (1.和歌山大システム工、2.神戸大院システム情、3.神戸大OaSIS)

[16p-A37-11]

チャープパルス位相シフトデジタルホログラフィーによるピコ秒オーダー間隔の光波面の観測

○福田 渉¹、唐澤 直樹¹ (1.千歳科技大理工)

Incoherent Coded Aperture Correlation Holography

Yuhong Wan^{*}, Tianlong Man, Wenxue Zhang, Minghua Zhang, Hongqiang Zhou
School of Physics and Optoelectronic Engineering, Beijing University of Technology, Beijing
100124, China

*yhongw@bjut.edu.cn

The basic academic idea and imaging scheme of incoherent coded aperture correlation holography will be firstly demonstrated. The development and roadmap of this technique then will be reviewed. In detail, we will demonstrate respectively our most recent research about incoherent self-interference holography based on Fresnel wave-plate-like coded aperture and incoherent holography without two-beam interference based on random phase coded aperture. The 3D deep learning network is employed to improve the performances of self-interference digital holography (SIDH). Meanwhile, deep learning network is also developed for high-quality reconstruction of the hologram in interferenceless coded aperture correlation holography (I-COACH). By exploring this technique multi-dimensional data encoding and decoding ability, incoherent coded aperture correlation holography was pushed toward scanning-free 3D polarization microscopy, multi-dimensional imaging, fast and large axial range imaging.

Enhanced live cell imaging through polarization digital holographic microscope

Shivam Kumar Chaubey^{1*}, Mohit Rathor¹, Rupen Tamang², and Biplob Koch², Rakesh Kumar Singh¹

¹Laboratory of Information Photonics and Optical Metrology, Department of Physics, Indian Institute of Technology (BHU), Varanasi, Uttar Pradesh, 221005, India

²Department of Zoology, Banaras Hindu University (BHU), Varanasi, Uttar Pradesh, 221005, India

E-mail: shivamkumarchaubey.rs.phy21@iitbhu.ac.in

1. Introduction

Polarization is significant in understanding complex optical behaviors and revealing properties that conventional methods often miss. However, traditional polarization measurement techniques typically involve multiple captures, which are not ideal for live cell imaging. This study presents our advancements in developing a polarization digital holographic microscope (PDHM) tailored for spatially resolved, label-free imaging. Our approach focuses on single-shot polarization imaging, which significantly enhances the feasibility of real-time observations [1]. We demonstrate the practical application of PDHM in imaging live cancer cells, specifically (MCF-7 breast cancer cells), showcasing its ability to capture detailed cellular structures without the need for external staining agents.

2. Basic principle

As shown in Fig. 1, in the PDHM setup, a coherent monochromatic beam is transformed into a 45-degree polarized beam, splits into object and reference arms. The object arm images the sample using a 40x objective and lens L3. The reference arm employs a common-path interferometer, introducing tunable carrier frequencies via orthogonal polarization components. The interference pattern is captured by a CCD (Prosilica GT 1920), which is represented as,

$$I(x, y) = I_{DC}(x, y) + \{C_x(x, y) + C_x^*(x, y)\} + \{C_y(x, y) + C_y^*(x, y)\}$$

The spectrum of an interferogram typically includes four off-axis Fourier components, with two being the conjugates of the other two, in addition to the central DC term.

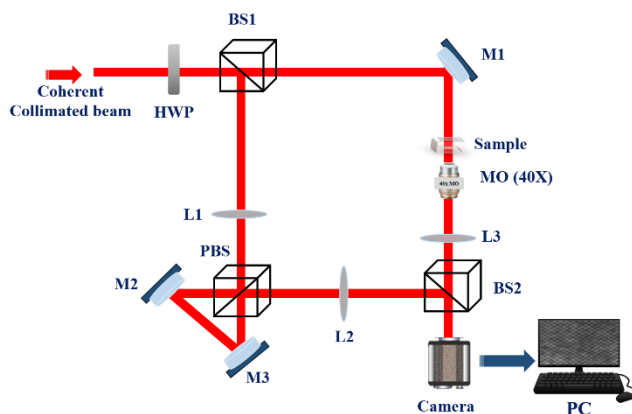


Figure 1. PDHM setup illustrating hologram recording.

Through the application of Fourier fringe analysis [2], the

frequency spectrum for each polarization component is distinguished to the extraction of amplitude and phase information within the signal domain.

3. Result and discussion

The PDHM technique was validated using known objects, including polarizers and QWPs. Subsequently, we imaged the polarization states of light from breast cancer cells (MCF-7), confirming the method's accuracy.

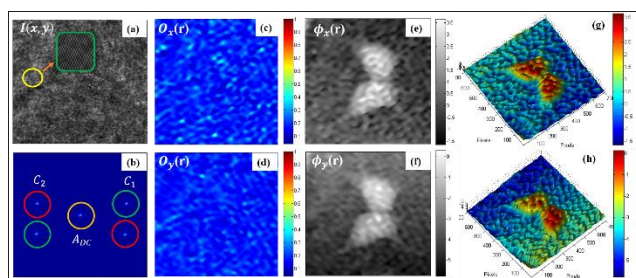


Figure 2. Reconstructing orthogonal polarization component fields from a recorded hologram.

Figure 2(a) shows the digitally recorded hologram. The hologram undergoes digital Fourier fringe analysis to reconstruct the complex fields [2]. Following this, Figure 2(b) displays its Fourier transform. Figures 2(b) and 2(c) illustrate amplitude distributions of the orthogonal polarization components, while corresponding unwrapped phase distributions are displayed in Figures 2(d) and 2(e) of an MCF-7 breast cancer cells and 2(g) and 2(h) showcase the mesh structures of the corresponding phase plot. The retrieved results of the cell region reveal a well-resolved complex spatial structure, highlighting the technique's suitability for spatially resolved polarization imaging.

5. Conclusion

In summary, we have highlighted the importance of digital holography microscopy for label-free, quantitative polarization imaging of biological specimens in a single shot. Our polarization digital holographic microscope captures the complex field of live MCF-7 breast cancer cells, unveiling intricate spatial structures.

4. Acknowledgment

Shivam Kumar Chaubey acknowledges the support from Department of Biotechnology (DBT) - BT/PR35557/MED/32/707/2019 and Rakesh Kumar Singh the acknowledges the support from I-DAPT HUB (IIT-BHU) - I-DAPT/IIT-BHU/2023-24/PROJECT SANCTION/46.

5. References

- [1] Rathor, M. ACS Photonics **10**(10), 3755–3762 (2023).
- [2] Takeda, M., Appl. Opt. **52**(1), 20–29 (2013).

Quantitative Zernike Phase-Contrast Microscopy with an Untrained Neural Network

The Univ. of Tokyo (Science¹, IST²), ○(D)Zinan Zhou¹, Keiichiro Toda¹, Rikimaru Kurata²,
Kohki Horie¹, Ryoichi Horisaki², and Takuro Ideguchi¹
E-mail: zinan@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

In optical microscopy, Zernike phase-contrast microscopy (PCM) is a technique that transforms phase shifts in a sample to contrast in intensity by interference. Despite its wide usage in many biological and clinical applications, it fails to provide quantitative information about the specimen. One prior collaborative work [1] from our group managed to add quantitiveness to PCM by a phase retrieval algorithm based on compressive propagation. However, this algorithm relies heavily on regularization and non-trivial optimization tricks, severely limiting its generalizability and usage in practical situations.

In this study, we revised the PCM phase retrieval algorithm to eliminate the need for ad hoc regularization terms. Inspired by deep image prior (DIP) [2], our algorithm employs an untrained neural network (uNN) as a structural prior. We demonstrated that the DIP-based phase retrieval algorithm can effectively retrieve quantitative phase from a single PCM image, and compared its performance with the ground truth and previous methods.

The objective function we would like to optimize is of the form

$$\arg \min_w \|I - H[f_w(I)]\|_2^2,$$

where I represents the observed intensity from PCM, H is the model of PCM created in the same way as [1], f_w is the uNN with parameters w , and $\|\cdot\|_2$ denotes the L^2 norm. By optimizing over w (Fig. 1), phase $\theta^* = f_{w^*}(I)$ can be recovered from the optimal w^* . For f_w , we compared several network architectures, such as encoder-decoder and U-Net.

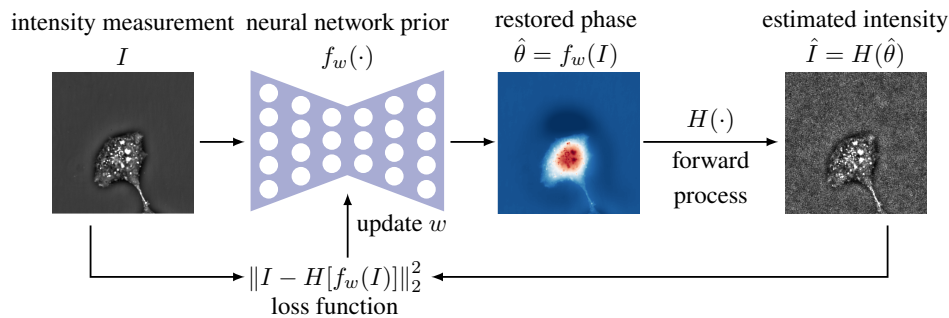


Figure 1: A schematic of the optimization process.

Fig. 2 shows an example of phase restoration. We used the ground truth phase sample to simulate PCM intensity, then fed the intensity into our algorithm to obtain the reconstructed phase. The root-mean-square error is 0.17 rad and the structural similarity index is 0.799.

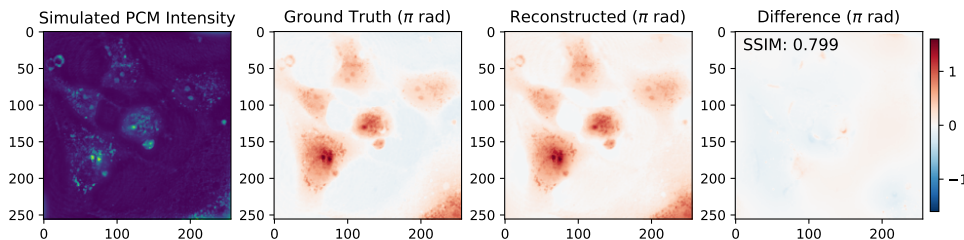


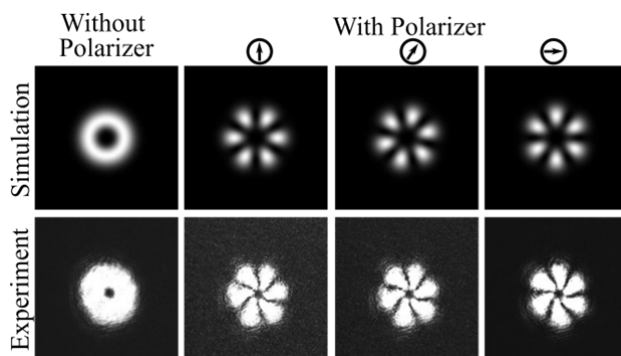
Figure 2: Simulated example of the proposed method.

- [1] Rikimaru Kurata et al. “Single-image phase retrieval for off-the-shelf Zernike phase-contrast microscopes”. In: *Optics Express* 32.2 (2024), pp. 2202–2211.
- [2] Dmitry Ulyanov, Andrea Vedaldi, and Victor Lempitsky. “Deep image prior”. In: *Proceedings of the IEEE conference on computer vision and pattern recognition*. 2018, pp. 9446–9454.

Generation of structured light beams on HOPS and HyPS using multiplexed holograms

°Sumit Kumar Singh¹, Kenji Kinashi^{1,*}, Naoto Tsutsumi¹, Wataru Sakai¹, and Boaz Jessie Jackin
Kyoto Institute of Technology¹, *E-mail: kinashi@kit.ac.jp

Structured light beams, particularly those with vortices, are highly significant in various applications due to their unique properties. These beams are found to be used in optical trapping, optical communications, and optical computations. Structured light beams with vortices can be categorized into scalar vortices, characterized by uniform polarization distribution, and vector vortex beams, characterized by non-uniform polarization distribution. Vector vortex beams are typically created by combining a vortex beam with a certain topological charge (l_1) and right circular polarization (RCP) with another vortex beam with a topological charge (l_2) and left circular polarization (LCP). The combination results in beams represented on either the higher order Poincaré Sphere (HOPS) or a hybrid order Poincaré Sphere (HyPS), depending on the relationship between the topological charges (l_1 and l_2). Generating these beams often involves complex optical setups or intricate material fabrication techniques. In this context, a straightforward method for generating vector beams on HOPS ($l_1 = -l_2$) and HyPS ($l_1 \neq l_2$) is introduced. The technique involves recording an intensity hologram with a P+P writing configuration, where the object beam carries a topological charge l_1 , and the reference beam is a plane Gaussian beam. In a second exposure, another intensity hologram is recorded on the same area of the polymer film, this time with an S+S configuration, an object beam with a topological charge l_2 , and a reference beam as a plane Gaussian beam. The multiplexed hologram is recorded in a birefringent material, specifically an azo-carbazole polymer. When the recorded hologram is illuminated with a P or S-polarized Gaussian beam, a vortex beam of topological charge l_1 or l_2 is generated, which passes through a Quarter wave plate (QWP) to result in a circular polarization state that can be represented on the poles of the HyPS. When the recorded area is illuminated with a P+S linearly polarized Gaussian beam, a vector beam appears when the reconstructed beam passes through a QWP, which can be represented on the equator of the HyPS.



The figure shows both simulation and experimental intensity profiles of the vector beam obtained through the superposition of two vortices with topological charges -2 and +4. The results confirm the successful generation of a vector beam on HyPS.

Ultra-wide field-of-view optical focusing with high-speed complex wavefront shaping

Atsushi Shibukawa¹

¹ Research Institute for Electronic Science, Hokkaido University, Japan
E-mail: ashibukawa@es.hokudai.ac.jp

1. Introduction

High-speed and high-precision optical focus control is crucial for optical systems like 3D laser-scanning microscopy and laser micromachining. Typically, the 3D focus control requires a 2D beam scanner such as galvanometric scanners for lateral scanning and a piezo actuator for axial scanning [1]. Another route for the focus control involves wavefront shaping using spatial light modulator (SLM) such as liquid-crystal-based SLM and digital micromirror device (DMD) [2]. This technique allows the random-access scanning of focal spots, making it useful for laser-scanning microscopy and high-throughput laser micromachining. Unfortunately, its focus control speed is inherently restricted by the SLM's refresh rate, which is around several tens of kHz.

We have recently proposed an ultrafast holographic 3D focus control technique called fast line-scanning amplitude-encoded scattering-assisted holographic (FLASH) focusing [3]. This proposed technique leverages the speed of a fast beam scanner to enhance the speed of complex wavefront shaping. Utilizing both a DMD and a resonant scanner, the FLASH achieves an unprecedented speed of wavefront shaping of up to 30 MHz, which is over 1,000 times faster than the refresh rate of the DMD. Furthermore, we have demonstrated that micrometer-sized focal spots can be scanned in a range of over 1 MHz within a large volumetric field-of-view of $5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 5.5\text{ mm}$, validating the superior spatiotemporal characteristics of the proposed technique.

2. Method

We briefly outline the proposed technique (Figure 1). Initially, a line beam is illuminated onto a DMD and scanned by a resonant scanner (RS). As the beam scans, its profile is sequentially modulated by binary patterns displayed on each DMD column. The amplitude-modulated line beam is then de-scanned and directed onto a scattering medium, generating a speckle field behind it. By modulating the beam to maximize the constructive interference behind the scattering medium using a previously developed transmission matrix method [4], bright spots can be created at arbitrary positions within the speckle field. The refresh rate of focal spots f_{spot} (the refresh rate of wavefront shaping f_{mod}) is simply given by $f_{\text{mod}} = f_{\text{spot}} = f_{\text{scan}} \times \kappa = f_{\text{scan}} \times M/M_{\text{col}}$, where f_{scan} , κ , M_{col} , and M are the scan frequency of the RS, the speed gain, the number of columns illuminated with a single line beam, and the total number of DMD columns, respectively. Assuming a standard DMD with $M = 1,000$, a line beam with $M_{\text{col}} = 1$, and a RS with $f_{\text{scan}} = 24\text{ kHz}$, the focus control

speed f_{spot} becomes 24 MHz (i.e., the speed gain κ is 1000).

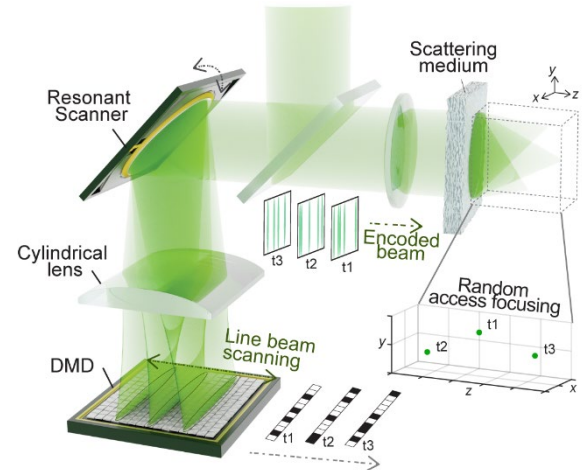


Figure 1. High-speed and wide field-of-view 3D focus control enabled by the FLASH focusing.

3. Results

We present one example of our experimental validation of the proposed technique. In this experiment, we used a 532 nm green laser as a light source, a resonant scanner with $f_{\text{scan}} = 24\text{ kHz}$, and a DMD with $M = 340$. We validated the focus control speed by recording the on/off modulation signal produced by alternating sequence of ‘focusing (on)’ and ‘random (off)’ patterns. The period between the on and off states was measured to be up to around 33 ns at the central DMD columns, corresponding to a refresh rate of 31 MHz. This represents an improvement of three orders of magnitude over the current state-of-the-art random-access scan technique.

4. Conclusions

We achieved 3D random-access focus control at a refresh rate exceeding 10 MHz using our proposed FLASH focusing. By employing a higher resolution and a fast polygon mirror, our FLASH technique could potentially reach a refresh rate of around 100 MHz. This technique offers significant potential for various applications, such as laser micromachining, panoramic display, and spectral shaping.

References

- [1] Göbel, W., Kampa, B. M. & Helmchen, F., *Nat. Methods* **4**, 73–79 (2007).
- [2] Guo, Z. V., Hart, A. C. & Ramanathan, S., *Nat. Methods* **6**, 891–896 (2009).
- [3] Shibukawa, A., *Nat. Commun.* **15**, 2926, (2024).
- [4] Popoff, S. M., Lerosey, G., Fink, M., Boccaro, A. C. & Gigan, S., *New J. Phys.* **13**, 123021 (2011).

単一画素計測を用いた波面計測における輝点位置の抽出

A method for determinations of spot positions in wavefront sensing based on single pixel detection

神戸大院システム情報 [○]小林 直弘, 仁田 功一

Kobe Univ.¹, [○]Naohiro Kobayashi, Kouichi Nitta

E-mail: 237x026x@stu.kobe-u.ac.jp

シングルピクセルイメージング(SPI, Single pixel imaging)に基づくシャックハルトマン波面センサーが提案されている¹⁾。このセンサーの特徴は、微弱光照射環境下における波面計測に適することである。また、このセンサーの画像再構成に深層学習が有用であること示されている。²⁾

従来手法^{1,2)}では画像再構成で発生するノイズの影響により、輝点の検出精度に課題があった。本報告では、課題となる検出方法について深層学習モデルを改良し、変調分布を検討した。従来手法では、実験系に用いるマイクロレンズ（焦点距離：14.3mm，レンズ直径：300μm）が生成する輝点の広がり（直径40μm）に整合させるため6×6画素を1ブロックとする変調分布を想定していた。本研究では、SPIのためのランダム変調分布として、空間光変調素子の1画素(7.56μm)単位のブロックパターンを採用した。この理由は、深層学習を通して輝点位置を求めるために有効であることが期待されるからである。7層の畳み込みニューラルネットワークネットワークモデルに対して、4000枚の学習データと1000枚の検証データを用いてパラメータを生成させた。学習で得られたネットワークを用いて検証を行った。

図1にシミュレーションによる検証結果を示す。図1(a)は、センサー面に結像するMLAの輝点分布、(b)はゴーストイメージングに基づく画像再構成により得られた結果、(c)が提案手法によって得られた結果である。図1より、輝点が従来手法に比べて明確であり、スポットの位置の特定に有用であることが確認できる。

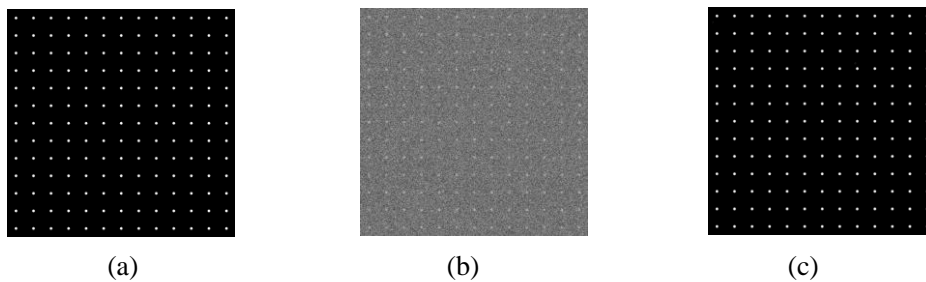


図1 検証結果: (a)MLAの輝点を模した画像.

(b) (a)の計算機SPIによる再構成シミュレーション

(c)提案手法による結果.

文献: [1]. 木山 他, 第70回応用物理学会春季学術講演会 1S-a-A202-4(2023).

[2]. 小林 他, 第84回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-A308-18 (2023).

1点読み出し時間ドメイン単画素イメージングによるリアルタイム像再生

Real-Time Image Retrieval with One-Time Readout Temporal Single-Pixel Imaging

東大院総合文化¹ ○(D1) 槻 凌多¹、深津 晋¹

Grad. School of Arts and Sciences, UTokyo¹ ○Ryota Keyaki¹, Susumu Fukatsu¹

E-mail: r-keyaki@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

シングルピクセルイメージング (SPI) は低空間分解能の検出器による計算イメージングである。撮像対象 (マスク) の透過光を集結させることで、微弱な信号しか得られない状況でも SPI は使用可能である。それゆえ SPI はセンシング等の応用への期待も高い。今日では空間のみでなく、時系列データを再生する時間ドメイン SPI (TSPI) としても SPI が広く研究されるようになった。

SPI には、マスク再生のプロトコルに応じて相関法 (e.g., ゴーストイメージング (GI)[1])、最小化法 (e.g., 圧縮センシング (CS)[2])、機械学習法の3系統が存在する。最近、我々は TSPI を相関法で構成した、1点読み出し時間ドメイン GI (OTR-TGI)[3] を開発した。OTR-TGI は単画素検出器の読み出しを1回に限定し、省計算資源化と高速化を図る方法である。ところが相関法は雑音を統計的に抑制して信号を抽出するから SNR が \sqrt{N} に比例する程度でしか向上せず、高速化が困難だった。そこで最小化法を採用し、圧縮センシングによる OTR-TSPI (CS-OTR-TSPI) を新たに開発することでこの問題からの脱却を試みた [4]。今回、物理実装系でリアルタイム動作に成功したので報告する。CS 実装上のオフセット問題への簡便で有効な対策を確立したので併せて報告する。

図1に CS-OTR-TSPI の物理実装系を示す。参照パターンを照明パターンの変調データで代用する、コンピューショナルな構成とした。各パターンは音響光学素子によって振幅変調し、透過光を太陽電池で受光した。信号読み出しには Arduino の GPIO を利用し、計算は PC 上で行った。

図2左に同データ数で得られた時系列マスクの再生像を示す。OTR-TGI、CS-OTR-TSPI とともに時系列マスクの信号が再生される。ところが信号のない背景に注目すると、OTR-TGI が強度0を中心に雑音が分布するのに対し、CS-OTR-TSPI では強度0のラインに吸着する。図2右に構造の類似性の指標である Structure を示す。OTR-TGI は序盤の少数データ時から緩やかに評価が上昇する。対照的に CS-OTR-TSPI の評価はデータ数 65 付近で急激に上昇し、データ数 100 付近で再生が完了する。このときのフレームレートは 1.90 Hz であり、1s 以下の測定で像再生が実現できた。

本研究の一部は、科研費補助金 学術変革領域研究 (A) (散乱透視学) 23H04130 を受けて行われた。

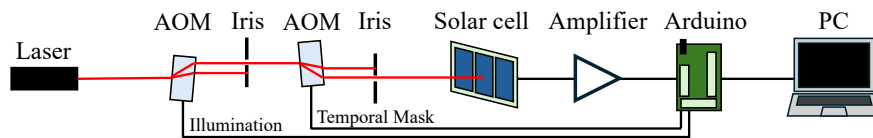


図1: CS-OTR-TSPI 物理実装系

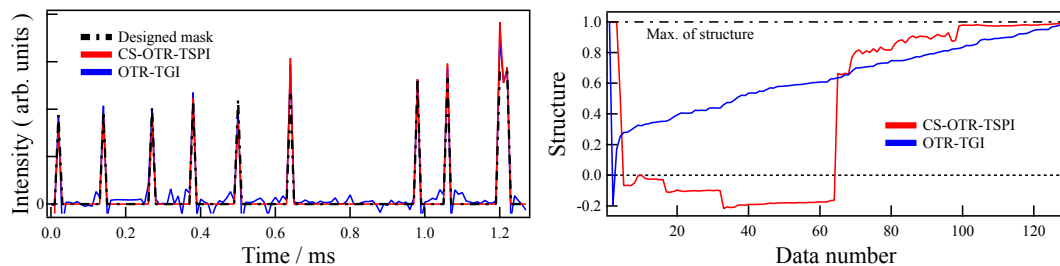


図2: (左) 再生像の比較. (右) Structure の時間発展.

- [1] T. B. Pittman *et al.*, Phys. Rev. A **52**, R3429 (1995).
 [2] O. Katz *et al.*, Appl. Phys. Lett. **95**, 131110 (2009). [3] Y. O-oka *et al.*, Opt. Lett. **48**, 3307 (2023).
 [4] J. Matsuno *et al.*, The 71st JSAP Spring Meeting, Tokyo, 23a-12A-1, 2024/3.

スペクトル符号化法による 2 次元ファイバイメージング-多芯化の効果-

Two-dimensional fiber imaging with spectrum encoding - Effect of multicore -

富山大医薬理工¹, 富山大工², ^{○(M2)}野々目 久祥¹ 小山 卓耶² 大嶋 祐介² 片桐 崇史²Graduate School of Pharma-Medical Sciences, Univ. of Toyama¹,Faculty of engineering, Univ. of Toyama²,[○]Hisayoshi Nonome, Takuya Koyama, Yusuke Oshima, Takashi Katagiri

E-mail: katagiri@eng.u-toyama.ac.jp

1. 背景

極細径内視鏡デバイスは胆管や、膵管、気管支などの末端の直接観察する医用内視鏡として必要とされている。我々はそのイメージング手法としてスペクトル符号化法に基づく単一ファイバイメージングを提案したり。スペクトル符号化法では、シングルモードファイバの先端に長さ数 cm のマルチモードファイバを融着接続した多モード干渉スペクトルエンコーダを用いる。

本研究では、スペクトルエンコーダに用いるファイバのコア数を増加することによる、画質向上の効果、明らかにすることを目的とする。

2. 撮像原理

提案する単一ファイバイメージングの撮像原理を Fig. 1 に示す。本手法ではキャリブレーションを行った後にイメージングを行う。キャリブレーションでは、撮像面内において正方形の微小面光源を順次移動させ、全ての位置座標における強度スペクトルの測定を行う。このとき、面光源から放出される光がスペクトルエンコーダによる変調を受け、位置座標に応じたスペクトルが取得される。得られたキャリブレーションデータを行列 A に格納する。イメージングでは、撮像対象の強度スペクトルを取得し、スペクトルデータをベクトル b とする。ここで、測定した強度スペクトルデータ b はキャリブレーションデータ A の線形和で表せることから次の連立一次方程式が得られる。

$$Ax = b \quad (1)$$

波長サンプリング数が画素数よりも大きい場合、最小二乗問題を解くことにより、測定対象の光強度分布 x が再構成される。

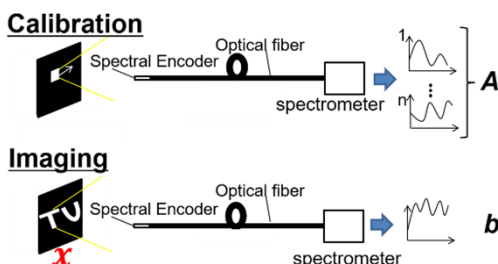


Fig. 1 Principle of single fiber imaging.

3. 2次元イメージングの精度評価

従来のシングルモードファイバを用いたエンコーダに変わり、7つのコアを持つマルチモードファイバを用いたエンコーダにより 2 次元イメージングの精度を検証した。

作動距離を 2 mm とし、キャリブレーションでは、面光源を移動させ 8×8 pixel の領域でスペクトルデータを取得した。このとき、7つのコアからは異なるスペクトルが得られる。このうち1つを抜き出したものを 1 コアのキャリブレーションデータ、スペクトル7つを連結したものを 7 コアのキャリブレーションデータとする。イメージングで使用した画像の顕微鏡写真と、1 コアと 7 コアのそれぞれで再構成した結果を Fig. 2 に示す。また、キャリブレーションデータの条件数と、再構成画像の画質評価指標 SSIM の結果を Table.1 に示す。結果から、1 コアに比べ 7 コアのキャリブレーションデータが良条件となり、SSIM の値が向上している。このことから、単一ファイバイメージングにおいて、コア数を増加することにより、画質向上の効果があることが示された。

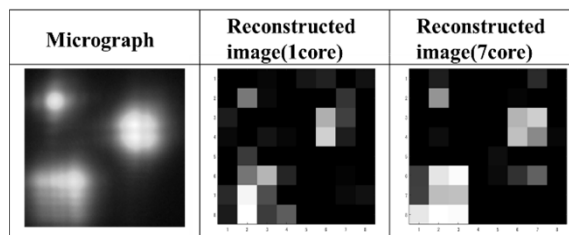


Fig. 2 Micrographs and reconstruction results.

Table. 1 Condition Number and SSIM.

	1 core	7 core
Cond.	732	482
SSIM	0.63	0.85

参考文献

1) Y. Takisawa, T. Katagiri and Y. Matsuura: Proc. SPIE 10872 (2019) 1087213.

マルチスポット照明を用いた散乱体深部蛍光イメージング

Deep fluorescence imaging by using multi-spot illumination



富山大理工, 富山大工, [○](M1)黒田 浩太¹, 小山 卓耶², 大嶋 佑介², 片桐 崇史²

Graduate School of Science and Engineering, University of Toyama¹,

Faculty of engineering, University of Toyama²,

[○]Kota Kuroda¹, Takuya Koyama², Yusuke Oshima², Takashi Katagiri²

E-mail: katagiri@eng.u-toyama.ac.jp

1. はじめに

臨床において蛍光イメージングが利用されている。蛍光イメージングは生体組織の強い散乱の影響を受けるため深部のイメージングが困難である。構造化照明を用いた単一ピクセルイメージングは、蛍光の計測時に空間分解能を必要としないことから、散乱媒質深部の画像取得に有効な手段の一つであるが、散乱媒質を伝搬した後の照射パターンをどのように推定するかという問題が残されている。

本研究では腹腔鏡に搭載可能なマルチスポット照明を用いた散乱体深部のイメージング法を提案しその実現可能性について調査する。

2. 原理

提案するイメージングシステムの概要を Fig. 1 示す。散乱媒質の下部の蛍光物質に対し、外部からマルチスポット照明を照射し、このときの散乱媒質表面の照明パターンを CCD カメラにより観測する。散乱媒質中に侵入した光は散乱の影響を受け蛍光物質に到達し、その蛍光は別の CCD カメラにより計測される。この測定を異なる照射パターンで複数回実施することで、下記の線形一次方程式を得る。

$$AHx=b \quad (1)$$

ここで行列 A は CCD カメラにより観測した照射パターン、ベクトル b は蛍光強度であり、正方行列 H は散乱媒質表面の照明パターンを撮像対象上の照明パターンに変換する行列である。撮像対象のスパース性を利用することにより高い精度で蛍光像 x を推定することができる。

3. 深部イメージングの数値シミュレーション

どの程度の深さまでイメージングが可能かを調査するため、 32×32 画素の画像再構成をシミュレーションにより実施した。シミュレーションでは、ファイババンドルを用いた光照射を想定し、ハニカム状に配列した多点ガウスビームスポットから、ランダムに 6 点を選択することで、マルチスポット照明パターンを作成した。次に光伝搬モンテカルロ法により、散乱係数 25 cm^{-1} 、吸収係数 6 cm^{-1} の低散乱媒質を伝搬した後の照射パ

ターンを算出した。最後に、仮想の撮像対象に対する画像再構成シミュレーションを実施し、構造的類似性指数 (SSIM) を用いて再構成像の評価を行った。

Fig. 2 に 100 枚の照射パターンを用いて実施したシミュレーション結果を示す。深度毎の SSIM の推移をグラフで示した。図より、深さ 3 mm 付近で再構成の精度が最大となり、それ以降は低下することが分かる。ハニカム状に配置されたマルチスポット照明には光が照射されないデッドスペースがあり、深さ 3 mm 以下の領域では、深部ほど散乱によりデッドスペースが埋まることで、再構成精度が改善する。一方、3 mm より深い領域では構造化照明のコントラストが失われるため、深部ほど撮像が困難となる。

マルチスポット照明は散乱媒質を伝搬後の照射パターンの推定が容易であることから、今後は、実験により、推定した照射パターンを用いた画像再構成の実現可能性について検討する。

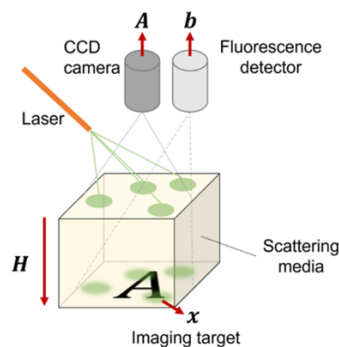


Fig. 1 Schematic of proposed imaging system.

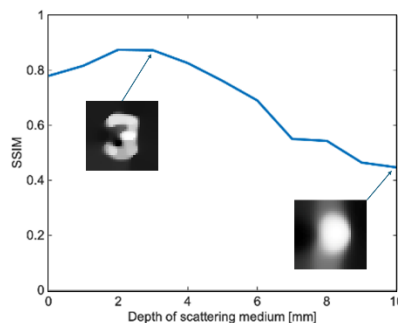


Fig. 2 SSIM as a function of depth.

モーションレスオプティカルスキャニングホログラフィにおける 多波長イメージングのための照明光変調パターン設計の検討

Design of Illumination Pattern for Multi-wavelength Imaging in Motionless Optical Scanning Holography

和歌山大システム工¹, 神戸大院システム情², 神戸大 OaSIS³

○ 最田 裕介¹, 西本 篤生¹, 米田 成^{2,3}, 野村 孝徳¹

Wakayama Univ.¹, Kobe Univ.², OaSIS, Kobe Univ.³

○Yusuke Saita¹, Atsuki Nishimoto¹, Naru Yoneda^{2,3}, Takanori Nomura¹

E-mail: saita@wakayama-u.ac.jp

空間光変調器 (SLM) を用い、その表示パターンを変えながら取得した 0 次元光信号から空間的な 3 次元イメージングが可能なモーションレスオプティカルスキャニングホログラフィ (MOSH) が提案されている [1]. MOSH はある一軸方向の偏光成分のみを変調する液晶型 SLM の性質を利用し、斜め方向入射偏光の当該軸方向成分のみを球面波変調し、残りの変調されない成分と干渉させることでフレネルゾーンプレートを生成し、その面内走査も実現している. ここで、液晶型 SLM は与える位相変調量に波長依存性があり、基本的にはある単一波長 (以降、設定波長と呼ぶ) で $[0, 2\pi)$ の範囲で位相変調できるように校正され、その波長外では正しい位相変調量が得られない.

ここで、多波長光源と分光器を用いたシングルピクセル分光イメージングが提案されており [2], これに MOSH を適用することを試みたが、設定波長外では二重像除去に必要な位相シフト法ができず、再生像にアーティファクトが生じていた [3]. この原因は位相シフト後の球面波と SLM に表示する変調パターンの位相周期性にあることがわかった. 設定波長 λ_s に対して与える位相変調量を $\Delta\varphi_{\lambda_s}$ とすると、他の波長 λ に対して与える位相変調量は $\Delta\varphi = \Delta\varphi_{\lambda_s} \times \frac{\lambda_s}{\lambda}$ である. $\lambda_s < \lambda$ の場合、実際に光波に与える位相変調量は設計値よりも小さくなる. 球面位相分布は位相範囲が $[0, 2\pi)$ に収まらず折り畳まれたパターンを用いるが、設定波長外では 2π に満たない位相で折り畳まれる. これが原因で、Fig. 1 に示すように、設定波長外では変調後の球面波の波面が不連続になり、位相シフトを与えて 2π を越えたときに面内で位相シフト量が異なる箇所が生じてしまう.

本研究では、すべての波長において位相シフト後に 2π を越える箇所が生じないように調節し、4 ステップ一般化位相シフト法 [4] と位相相関法 [5] により再構成処理をおこなった. 設定波長 488 nm において変調パターンの位相範囲を $[0, 3\pi/2)$, 位相シフト量を $\pi/6$ ずつとし、488 nm, 532 nm, 633 nm の 3 波長で、SLM の結像面、およびそこから 20 mm 離れた面に配置した物体のイメージングをシミュレーションした. Fig. 2 に示す結果より、各波長で物体が配置された位置において再生像が得られているが、設定波長外ではやや画質が低下していることがわかる. また、設定波長から離れるほど画質の低下が大きいことがわかった.

参考文献

- [1] N. Yoneda, *et al.*, Opt. Lett. **45**, 3184 (2020).
- [2] F. Soldevila, *et al.*, Appl. Phys. B **113**, 551 (2013).
- [3] 西本他, 日本光学会情報フォトンクス研究グループ第 21 回関西学生研究論文講演会 (2023).
- [4] T. Nomura, *et al.*, Appl. Opt. **56**, 6851 (2017).
- [5] C.-M. Tsai, *et al.*, Appl. Opt. **60**, B113 (2021).

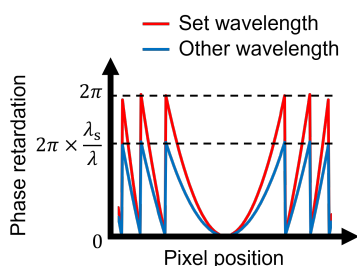


Fig. 1 Phase retardation due to spherical phase distribution for each wavelength.

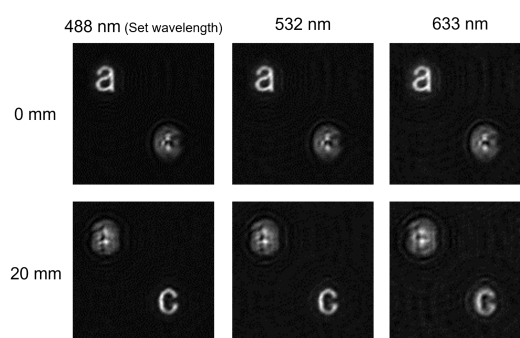


Fig. 2 Reconstructed images at each depth position and wavelength.

チャープパルス位相シフトデジタルホログラフィー によるピコ秒オーダー間隔の光波面の観測

Observation of Optical Wavefronts with Picosecond-Order Intervals

Using Chirped Pulse Phase-Shifting Digital Holography

公立千歳科学技術大学大学院理工学研究科 ○(M2) 福田 渉, 唐澤 直樹

Graduate School of Science and Technology, Chitose Institute of Science and Technology

○(M2) Wataru Fukuda, Naoki Karasawa

E-mail: m2230300@photon.chitose.ac.jp

我々の研究室では、チャープパルスを用いた位相シフトデジタルホログラフィーにより、複数枚のピコ秒オーダーの間隔の光波面の観測をフェムト秒オーダーの分解能で従来実証していた [1]。本研究は、従来の光学系を改良することにより取得画像の質の改善を目的として行った。

Fig1 に実験光学系を示す。BS2 によって分割された物体パルスは、それぞれ焦点距離 1 m の凸レンズ付き五角形型スリットと焦点距離 1 m の凹レンズ付き星型スリットを通過しており、遅延時間が 1.67 ps の 2 つの異なる振幅分布と位相分布を持つ。参照パルスは高屈折率ガラスによってチャープが与えられ、4 分の 1 波長板によって円偏光となっている。参照パルスをチャープさせ、物体パルスに光路長差をつけて分割することで、周波数が異なる 2 つのホログラムを偏光カメラにより同時に記録し、再生を行う [2]。参照光のタイミングは五角形型スリットを通る物体光に対しては長波長 (802 nm) 側で両者が干渉し、星型スリットを通る物体光に対しては短波長 (791 nm) 側で両者が干渉するように合わせている。DOE で干渉光を 2 つに分割し、それぞれの光波を BPF に異なる角度で入射させ、特定の波長の光のみを透過させる。分割された光を偏光カメラによって 4 つの異なる直線偏光方向の強度画像を異なる領域に記録し、コンピュータを用いてそれぞれの物体光の光波面を再構成する。

Fig2 に取得画像を示す。(a), (a') は長波長側の物体パルスの振幅・位相画像で、(b), (b') は短波長側の物体パルスの振幅・位相画像である。それぞれの強度画像の平均二乗誤差は、長波長側が 0.0252、短波長側は 0.0883 となり、以前の実験より小さな値が得られた。これらの結果から、光学系を改良することにより取得画像の質を改善させることが可能なことがわかった。

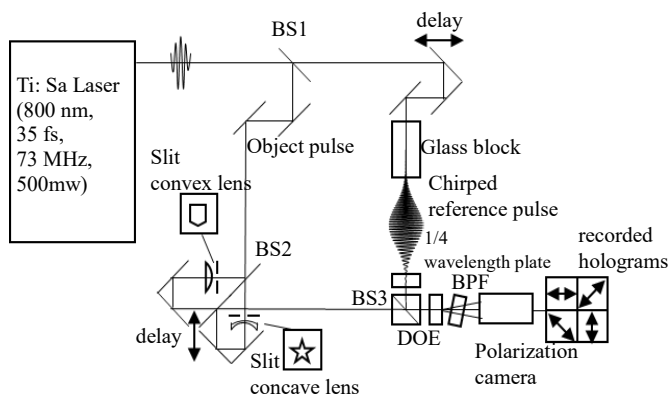


Fig1 Experimental Setup, BS : Beam Splitter, DOE : Diffractive Optical Element, BPF : Band Pass filter

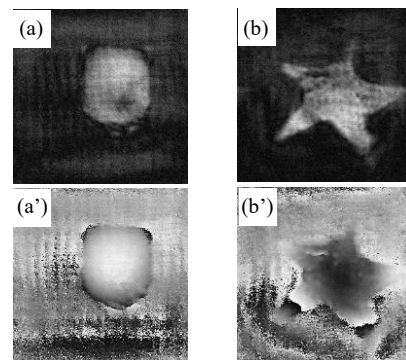


Fig2 (a), and (b) show the reconstructed amplitude images. (a'), and (b') show the reconstructed phase images. (a), and (a') show the long wavelength images. (b), and (b') show the short wavelength image.

[1] 福田渉, 今城秀, 窪田駿二, 唐澤直樹, "チャープパルス位相シフトデジタルホログラフィーによる複数の異なる時間における画像の同時取得", 第 59 回応用物理学会北海道支部第 20 回日本光学会北海道支部合同学術講演会, 北海道大学, 2024 年 1 月 6 日~1 月 7 日, B-1-6

[2] N. Karasawa, "Chirped pulse phase-shifting digital holography for capturing the sequence of ultrafast optical wavefronts," Results in Optics, Vol. 12, p. 100475 (2023).

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.2】 3.2 情報フォトンクス・画像工学、4.4 Information Photonicsのコードシェア

[17a-A37-1~8] CS.2 3.2 情報フォトンクス・画像工学、4.4 Information Photonicsのコードシェア

[17a-A37-1]

[JSAP-Optica Joint Symposia Invited Talk] Deep Neural Network 3D Reconstruction Using One-Shot Color Mapping of Reflectance Direction Fields

○Hiroshi Ohno¹ (1.Toshiba RDC)

[17a-A37-2]

Corneal quality assessment for corneal transplantation using hyperspectral imaging

○(D)Maria Merin Antony¹, Murukeshan Vadakke Matham¹ (1.Nanyang Techn. Univ.)

[17a-A37-3]

Enhancing the Accuracy of Identification in Complex Environmental Backgrounds using YOLO V7 and U2NET: Orchid Repotting

○(M2)HUNG WEI HSU¹, Chih-Chung Wang¹, Jia-Han Li¹ (1.National Taiwan University)

[17a-A37-4]

[JSAP-Optica Joint Symposia Invited Talk] Compact super multi-view and foveated holographic near eye display for augmented reality and virtual reality applications

○Jae-Hyeung Park¹, Myeong-Ho Choi^{2,1}, Woongseob Han^{2,1}, Minseong Kim^{2,1} (1.Seoul National Univ., 2.Inha Univ.)

[17a-A37-5]

3色レーザー照明を有するフェムト秒レーザー励起マイクロクラウド体積ディスプレイ

○(M2)沼澤 啓亮¹、熊谷 幸汰¹、早崎 芳夫¹ (1.宇都宮大オプティクス)

[17a-A37-6]

ダブルパルス励起空中ボクセルの評価と体積映像描画への適用

○熊谷 幸汰¹、遠藤 統伍¹、早崎 芳夫¹ (1.宇都宮大オプティクス)

[17a-A37-7]

計算機ホログラムを用いた体積的ビーム成形

○(D)黒尾 奈未¹、早崎 芳夫¹ (1.宇大オプティクス)

[17a-A37-8]

複数のライン集光ビームを回折する体積ホログラフィック光学素子の作製

○(M2)玉井 裕基¹、茨田 大輔² (1.宇都宮大学光工学、2.宇都宮大学 CORE)

Deep Neural Network 3D Reconstruction Using One-Shot Color Mapping of Reflectance Direction Fields

Toshiba RDC, Hiroshi Ohno

E-mail: hiroshi1.ohno@toshiba.co.jp

In many manufacturing processes, real-time inspection of microscale three-dimensional (3D) surfaces is crucial. Therefore, a method integrating deep neural networks (DNNs) has been proposed for obtaining a microscale 3D surface from a single image, or two images, captured by an imaging system referred to as the one-shot BRDF (Bidirectional Reflectance Distribution Function) system, equipped with a multicolor filter [1-4]. This system can acquire reflectance direction fields using one-shot color mapping that assigns light directions to specific colors. Assuming a smooth and continuous surface, the 3D shape can be reconstructed from either a single image or two images captured by the one-shot BRDF system. This process utilizes DNNs that function as a gradient descent method to solve nonlinear partial differential equations, without the need for training data. This DNN-incorporated method is referred to as OneShot3DNet. The effectiveness of this method has been validated numerically and experimentally.

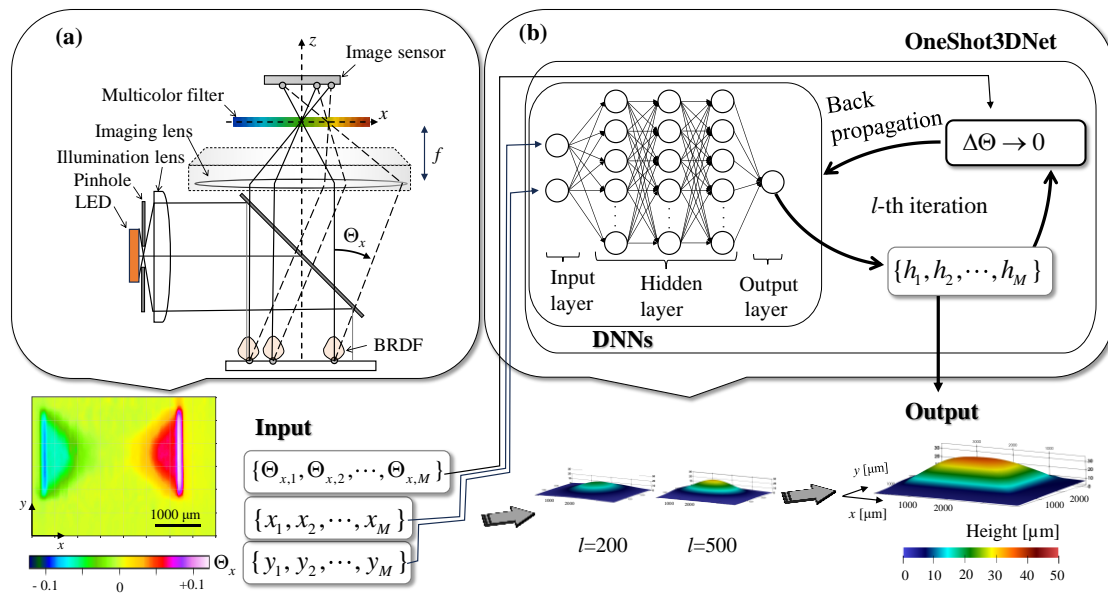


Fig. 1. (a) Schematic cross-sectional view of the one-shot BRDF imaging system. (b) Deep neural network-incorporated method (OneShot3DNet) for reconstructing 3D surfaces.

References

1. H. Ohno, OSA Continuum **4**(3), 840-848 (2021).
2. H. Ohno and T. Kamikawa, Optical Review **28**, 655-661 (2021).
3. H. Ohno and T. Usui, Optics Letters **46**(17), 4116-4119 (2021).
4. H. Ohno, Journal of the Optical Society of America A **41**(7), 1240-1249 (2024).

Corneal quality assessment for corneal transplantation using hyperspectral imaging

Maria Merin Antony, Murukeshan Vadakke Matham*

Centre for Optical and Laser Engineering, School of Mechanical and Aerospace Engineering,
Nanyang Technological University, Singapore

*E-mail: mmurukeshan@ntu.edu.sg

1. Introduction

Cornea is the most widely transplanted human tissue. To ensure good surgical results and effective visual recovery, thorough screening of donors and donor tissues is necessary throughout the process [1]. This screening minimizes the risk of transmitting infectious diseases and environmental contaminants to the recipient, while also guaranteeing the transplant's high optical and functional quality. Therefore, the quality assessment of the cornea at various stages - from donor selection to the transplantation procedure is crucial to ensure its longevity and effectiveness. Currently, these assessments are performed using equipment with the need of skilled personnel, where assessment can be subjective and lack specificity [2]. This research in this context, proposes a methodology using hyperspectral imaging (HSI) for the quality assessment of corneal flaps prior to transplantation to address these issues. HSI, which is a non-invasive imaging technique, captures both spectral and spatial information of the sample under investigation offering automation possibilities and chemical specificity [3].

2. Materials and methods

The corneal flap or button is carefully removed from the porcine eye and was imaged using a hyperspectral imager (Pika XC2, Resonon) with spectral resolution of 1.3 nm as shown in the Fig. 1. Corneal button is then inspected for stains or pigments in transmission mode.

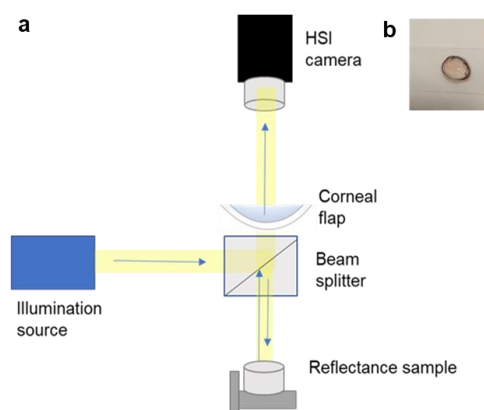


Fig. 1. a. Experimental setup in transmission mode, b. corneal button or flap placed in a glass slide.

The corneal flap is mounted on a stage and scanned at a speed of 100 $\mu\text{m/s}$ across the beam to capture the whole surface of the cornea.

3. Results and discussion

RGB photograph of the porcine cornea button used as sample for imaging is shown in Fig. 2a with regions for hyperspectral data extraction marked as 1, 2, 3, and 4. The

spectra extracted are shown in Fig. 2b.

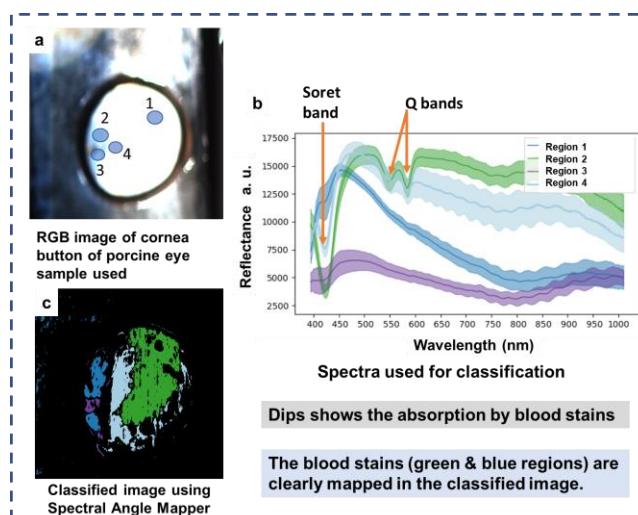


Fig. 2. a. RGB photograph of the cornea button, b. spectra acquired from four different regions, c. SAM based classification.

The dips observed in the reflectance spectra at approximately 420 nm, 550 nm and 580 nm are associated with the Soret band (around 420 nm) and Q bands (550 nm, 580 nm) of oxyhemoglobin, a major component of blood [4]. These spectral features are therefore strongly suggestive of the presence of oxyhemoglobin, confirming that the stains are blood-related which need to be cleaned thoroughly prior to transplantation procedure to avoid any post-operative implications. The spectral angle mapper (SAM) was used for image classification as shown in Fig. 2c where the stains were clearly mapped (green and light blue regions) based on the spectra library created from four different regions. By mapping such specific wavelengths to the known absorption peaks of substances, the various stains and pigments can be accurately identified and confirmed.

4. Conclusions

The proposed spectral image analysis provides a robust and non-invasive method for detecting blood, enhancing the precision and reliability of the corneal quality.

Acknowledgements

The authors also acknowledge financial support received through COLE-EDB funding at COLE, NTU.

References

- [1] Vito Romano, et al. *Survey of Ophthalmology*, 69, (2024), 3.
- [2] Aschauer, J., Klimek, M. et al. *Sci Rep* 14, 2124 (2024)
- [3] M. M. Antony, C. S. S. Sandeep, M. V. Matham, *Optics and Lasers in Engineering*, 178, (2024), 108238.
- [4] Gienger, J., Smuda, K., Müller, R. et al. *Sci Rep* 9, (2019) 4623.

Enhancing the Accuracy of Identification in Complex Environmental Backgrounds using YOLO V7 and U2NET: Orchid Repotting

Hung-Wei Hsu, Chih-Chung Wang, and Jia-Han Li*

Department of Engineering Science and Ocean Engineering, National Taiwan University, Taipei 106319, Taiwan

E-mail: r105250001@ntu.edu.tw, d09525016@ntu.edu.tw, * : jiahan@ntu.edu.tw

1. Introduction

In the horticultural industry, determining the appropriate timing for repotting is crucial for plant health and growth. Traditional Automated Optical Inspection (AOI) techniques fall short in addressing the high variability inherent in horticulture due to environmental, genetic, and growth-related factors. These traditional methods are inadequate for dealing with the dynamic and complex nature of plant cultivation. Therefore, advanced deep learning models are needed to predict optimal repotting times and ensure precise target object detection amidst complex backgrounds. This study employs YOLOv7[1] for prediction and U2NET[2] for image segmentation, replacing the masking function of YOLOv7. The effectiveness of three YOLOv7-trained models is compared to evaluate their performance in recognizing *Oncidium* orchids under challenging, cluttered background conditions.

2. Methodology

Varatharasan[3] et al. addressed cluttered backgrounds in object detection by creating synthetic data with heterogeneous backgrounds to enhance learning efficiency. Extending their methodology, we captured images of *Oncidium* for background removal. After processing, the data were categorized into three classes: background removal, no background removal, and a combination of both. In the data processing phase, images were classified using background removal, no background removal, and a hybrid approach to improve recognition precision. U2NET was utilized for background removal, significantly reducing processing time. Subsequently, we trained the YOLO V7 model on these images to develop a custom recognition model. These three models—background removal, no background removal, and hybrid—were compared to analyze their recognition accuracy.

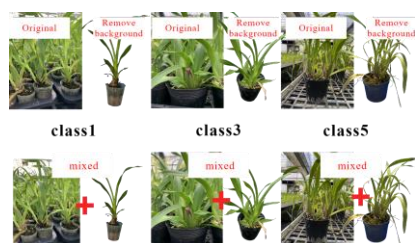


Fig. 1 class 1 represents 1-inch potted plants, class 3 represents 3-inch potted plants, and class 5 represents 5-inch potted plants.

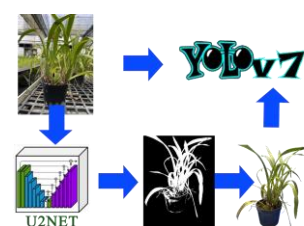


Fig. 2 YOLO V7 deep learning model architecture.

3. Results and Discussion

In practical field recognition, the hybrid model demonstrated the best performance among the three models. Although the training data with background removal yielded the best prediction values during pre-training, the actual field environment, characterized by complex backgrounds, revealed that the background removal model had lower recognition rates in such conditions. From Figure 3, it can be observed that the hybrid model has the best recognition rate among the three models for identifying potted plants that are ready for repotting.



Fig. 3 Predicted results of the three models

3. Conclusions

In the data processing phase, replacing the YOLO V7 mask function with the U2NET model considerably accelerates data processing speed. For image handling, photos were processed under three different conditions: with background removal, without background removal, and using a mixed approach. The mixed training method, which combines features from both background removal and non-removal, effectively addresses the challenges posed by complex backgrounds. This method emphasizes training on contour shapes extracted from backgrounds, thereby enhancing training effectiveness in environments with intricate textures. Utilizing advanced models like U2NET and YOLO V7 has substantially improved the precision of identifying and classifying different growth stages of orchids, which is vital for automating horticulture and customizing applications in orchid cultivation.

Acknowledgements

We are grateful to National Taiwan University Molecular Farm and Industrial Technology Research Institute, grant number ITRI-112HZE1100D.

References

- [1] WANG, Chien-Yao; BOCHKOVSKIY, Alexey; LIAO, Hong-Yuan Mark. YOLOv7: Trainable bag-of-freebies sets new state-of-the-art for real-time object detectors. In: Proceedings of the IEEE/CVF conference on computer vision and pattern recognition. 2023. p. 7464-7475.
- [2] QIN, Xuebin, et al. U2-Net: Going deeper with nested U-structure for salient object detection. Pattern recognition, 2020, 106: 107404.
- [3] V. Varatharasan, H. -S. Shin, A. Tsourdos and N. Colosimo, "Improving Learning Effectiveness For Object Detection and Classification in Cluttered Backgrounds," 2019 Workshop on Research, Education and Development of Unmanned Aerial Systems (RED UAS), Cranfield, UK, 2019, pp. 78-85, doi: 10.1109/REDUAS47371.2019.8999695.

Compact super multi-view and foveated holographic near eye display for augmented reality and virtual reality applications

Jae-Hyeung Park¹, Myeong-Ho Choi^{1,2}, Woongseob Han^{1,2}, Minseong Kim^{1,2}

¹ Seoul National University, ² Inha University
E-mail: jaehyeung@snu.ac.kr

1. Introduction

Near eye displays (NEDs) are glasses-type wearable displays that play a pivotal role in augmented reality (AR) and virtual reality (VR) applications. Various optical techniques have been developed to realize compact form factor, light weight, wide field of view, large eyebox, and high angular resolution. However, natural three-dimensional (3D) image presentation without the vergence-accommodation conflict (VAC) remains a challenging issue. The VAC adversely affects the visual comfort of users, leading to eye fatigue, particularly during prolonged use. To address the VAC, NEDs should present optical 3D images to each individual eye of the users. Super multi-view (SMV) and holographic display techniques can generate optical 3D images and their application to the NEDs has been an active research topic recently.

In this presentation, we introduce our recent work on SMV and holographic NEDs for AR and VR applications. We show that the light source array can be adopted in both AR and VR configurations to achieve the SMV NED with a slim form factor. The realization of the foveated holographic VR NED is also discussed, demonstrating its compact implementation using a geometric phase lens.

2. Slim SMV NED

SMV displays present 3D images by projecting their slightly different multiple perspectives to the corresponding viewpoints inside the pupil of each individual eye of the user. When the eye is focused at the intended 3D image distance, the projected perspective images are precisely overlapped in the retina plane, forming a clear and sharp image. When the eye is focused at different distance, the perspective images are spatially separated in the retina, giving defocused or blurred imagery. This effect drives the proper accommodation response of the user, solving the VAC problem.

The implementation of the SMV technique to the AR and VR NEDs often results in bulky system form factor and reduced image resolution, diluting its own advantages. In our work, we use an LED array and a ferroelectric liquid crystal display on silicon (FLCoS) with a waveguide configuration [1]. The light from a LED is delivered by the waveguide to the eye side, modulated by the FLCoS, and then focused on a single viewpoint spot in the eye pupil plane by an out-coupler holographic optical element (HOE) on the waveguide. The time-multiplexed synchronized operation of the LED array and the FLCoS enables the projec-

tion of the multiple perspective images to the slighted separated viewpoints within the eye pupil, presenting 3D images. The use of the time-multiplexing scheme enables the 3D image presentation with its full resolution of the FLCoS regardless of the number of the viewpoints. The novel optical configuration with the LED array, FLCoS, and waveguide enables slim and compact system implementation without compromising the form factor.

3. Compact foveated holographic NED

Holographic displays present 3D images by reproducing the wavefront of the object. Coherent laser illumination is modulated by a spatial light modulator (SLM), forming 3D images with complete depth cue. The holographic NEDs have several advantages including the VAC-free natural 3D image presentation, wide depth range, and the aberration pre-compensation capability. These features make the holographic NED highly promising.

In our work, we add a foveated display feature to the holographic NED. The foveated display is a technique realizing a wide field of view with a smaller number of pixels utilizing the non-uniform visual resolution of the eye across the field of view. We develop a novel optical configuration comprising a geometric phase lens and two SLMs for the foveated holographic NED [2]. The polarization dependent optical power of the geometric phase lens gives different magnifications to the holographic images from two SLMs, realizing the foveated image presentation. The holographic virtual image formation at an arbitrary distance by the individual SLM allows all the physical system components to be tightly packed, enabling highly compact system implementation.

4. Conclusions

We have developed a waveguide-type SMV NED and a foveated holographic NED. Both of these designs address the VAC while maintaining slim and compact form factor. In the presentation, the principle and the experimental results will be discussed.

Acknowledgements

This research was supported by National Research Foundation of Korea (2022R1A2C2013455).

References

- [1] W. Han et al., Proc. SPIE **12913** (2024) article 13.
- [2] M.-H. Choi et al., Proc. SPIE **12913** (2024) article 14.

3色レーザー照明を有するフェムト秒レーザー励起マイクロクラウド 体積ディスプレイ

Femtosecond-laser-generated micro cloud volumetric display with RGB laser illumination

宇都宮大オプティクス[○](M2)沼澤 啓亮, 熊谷 幸汰, 早崎 芳夫

Utsunomiya Univ. CORE[○]Keisuke Numazawa, Kota Kumagai, Yoshio Hayasaki

E-mail: hayasaki@cc.utsunomiya-u.ac.jp

体積的ディスプレイは, ボクセルを実空間上に3次元的に生成し, 体積的映像を表示する装置である. これは, 広い視野とヒトの奥行き知覚を満足する体積像の表示を特徴とする. 表示方法としては, ボクセルが発光する自発光型と, ボクセルが照明光を散乱する光散乱型に分類される. 光散乱型は, 照明光によりボクセルの色を調節できるため, 体積像のカラー化が容易である.

本研究は, 霧箱にフェムト秒レーザーを集光照射することで生成される雲をボクセルとした体積的ディスプレイを提案する. フェムト秒レーザーを霧箱内に集光すると, その高いピーク強度が多光子励起を引き起こし, 空気がイオン化される. マイクロクラウドは, イオン化された空気を凝結核として形成される微小な液滴の集合体で, 集光点近傍でのみ生成される. 照明光によって可視化されたこれらの液滴は, 光散乱型ボクセルとして機能する. レーザー光が走査されると, 飛行機雲のようにその場に一定時間残存するため, 人間の目にとってのリアルタイム体積映像を描画できる.

Figure 1 は, 実験光学系を示す. 実験光学系は, 主に, フェムト秒レーザー, ガルバノスキャナ, F θ レンズ, RGB レーザー, 霧箱で構成された. 霧箱内の側面上部にはスポンジテープが接着された. スポンジには無水エタノールが

浸された. 霧箱の底はドライアイスで冷やされ, エタノールの過飽和状態を生成された.

Figure 2 は, フェムト秒レーザーと同軸に入射された RGB レーザーによって照明されたマイクロクラウドを示す. ボクセルの生成位置と照明光の波長切り替えの同期を行うことで, フルカラー映像を描画できる. 今後は, 照明光の波長に対する光散乱特性の評価を行う予定である.

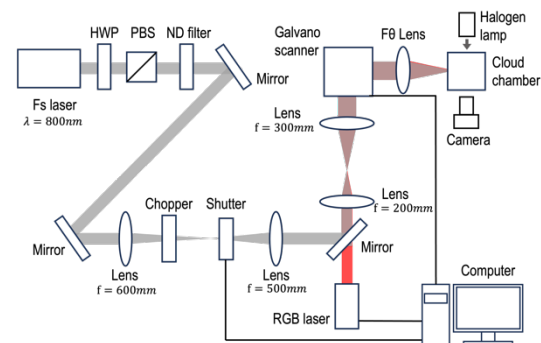


Fig. 1 Experimental setup.

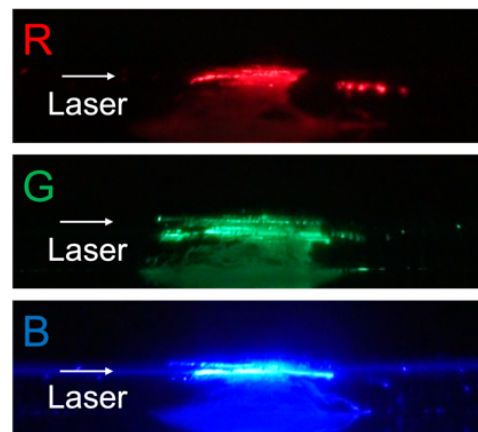


Fig. 2 Micro clouds illuminated with RGB lasers.

ダブルパルス励起空中ボクセルの評価と体積映像描画への適用

Evaluation of double-pulse-excited aerial voxels

and their application to volumetric image drawing

宇都宮大オプティクス, 熊谷 幸汰, 遠藤 統伍, 早崎 芳夫

Utsunomiya Univ., ^oKota Kumagai, Togo Endo, Yoshio Hayasaki

E-mail: kumagai@a.utsunomiya-u.ac.jp

ボリュメトリックディスプレイは、対象の形状を描くようにボクセルを生成することで体積映像を表示する技術である。とくに、空気中への体積映像表示は、ユーザーと映像空間がシームレスに繋がっているため、AIを実世界に具現化できるインタフェース技術として期待される。これまでに空気中へ体積映像表示する方法は、ボクセルとなる粒子をレーザー[1]や超音波[2]を用いて補足する方式と、フェムト秒レーザー励起プラズマの自発光を用いて生成する方式[3]が提案された。補足方式は、照明光を与えることで可視化される光散乱型ボクセルであり、照明光の色変化のみでカラー化できる優位性がある。生成方式は、ボクセルを補足し続ける必要がないため、実世界の物体との接触があっても消滅しない堅牢性の高い映像を表示できる。しかし、レーザー励起により生成されたボクセルは、励起対象となる空气に依存して青白色であり、そのカラー化に課題があった。一方で近年、我々は、波長 515 nm を有するフェムト秒レーザーにより励起された空中ボクセルの評価を通して、光散乱型ボクセルとしての有用性を示した[4]。本研究では、空中カラーボリュメトリックディスプレイの実現に向けて、ボクセルの光強度増強を目的としたダブルパルス励起空中ボクセルを評価し、体積映像描画への適用について検討する。

Figure 1 は、実験光学系を示す。第二次高調波発生器により 1030 nm から 515 nm に変換されたフェムト秒レーザーは、偏光ビームスプリッターによりふたつのパルスに分けられた。このダブルパルスは、一方が光学ディレイにより時間遅延が与えられた後、焦点距離 50 mm のレンズにより空気中に集光照射されることでボクセルを形成した。形成されたボクセルは、空間光強度分布とスペクトルをそれぞれカメラと分光器により取得された。Figure 2 は、シングルおよびダブルパルス励起により空気中に生成されたボクセルである。ダブルパルス励起は、エネルギー 330 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ 、時間差 1.8 ns で照射され、シングルパルス励起に比べ著しいボクセルの光強度増加を示した。

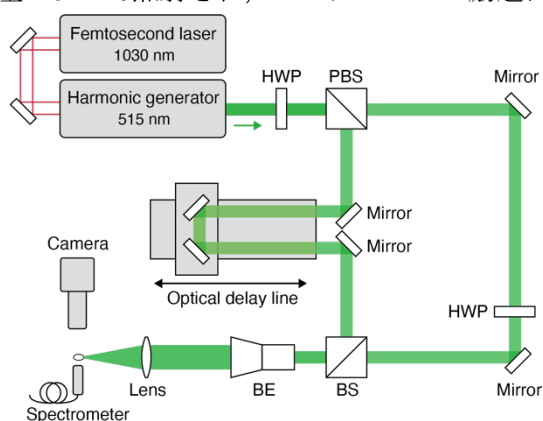


Fig.1 Optical setup.

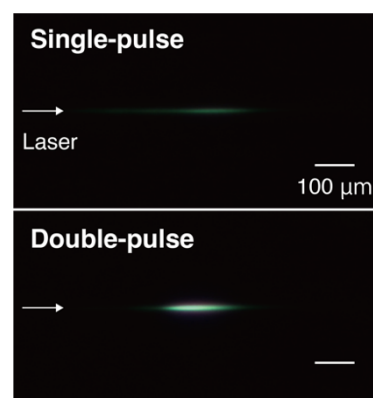


Fig.2 Single and double-pulse-excited voxels.

参考文献

- [1] D. E. Smalley et al., Nature **553**, 486 (2018).
- [2] R. Hirayama et al., Nature **573**, 320 (2019).
- [3] Y. Ochiai et al., ACM Trans. Graph. **35**, 1 (2016).
- [4] 熊谷ら, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会, 15p-A202-6 (2023).



計算機ホログラムを用いた体積的ビーム成形

Volumetric beam shaping using a computer-generated hologram

○(DC)黒尾 奈未, 早崎 芳夫

Center for Optical Research and Education (CORE), Utsunomiya University

○(DC) Nami Kuroo, Yoshio Hayasaki

E-mail: kuroo_n@opt.utsunomiya-u.ac.jp

レーザー加工は、品質とスループットの要求を満たしながら、対象や加工形状の高度化・複雑化が要求される。そのため、ガウスビームの強度や直径とビームの照射方法だけでは、十分に最適化されない場面も増え、多様な成形ビームを用いたレーザー加工が、実施されるようになってきた。さらに、特殊集光形状や複数ビーム生成等の2次元のビーム成形に加えて、光軸方向のビーム形状も同時に成形する3次元のビーム成形(発表者らは体積的ビーム成形と呼ぶ)が求められるようになった。

体積的ビーム成形は、液晶空間光変調素子(LCSLM: liquid-crystal spatial light modulator)上に表示された計算機ホログラム(CGH: computer-generated hologram)を用いて補償光学的に実行され、その光強度分布制御方法[1]が確立され始めた。しかし、これまで示されてきたビーム成形は、3次元的に配列された集光ビームや、線状ビームなど基本的な形状で、多様な成形例は多くない。

本研究では、3次元方向に拡張された荷重フーリエ反復法(weighted Gerchberg - Saxon (WGS) method) [2, 3]を用いてCGHが最適化される。Fig. 1はWGS法のフローチャートである。

Fig. 2は軸方向長尺ビーム成形用に最適化したCGHを用いて再生したビーム強度分布である。Fig. 2(a)は形が崩れ、成形不良となった例である。Fig. 2(b)は緩やかに最適化が進むように重みを調節し、軸方向に強度がフラットな長尺ビームが成

形された。本発表では、WGS法を用いて様々な形状の体積的ビーム成形を試み、体積的ビーム成形用最適化アルゴリズムの可能性を探った結果を報告する。

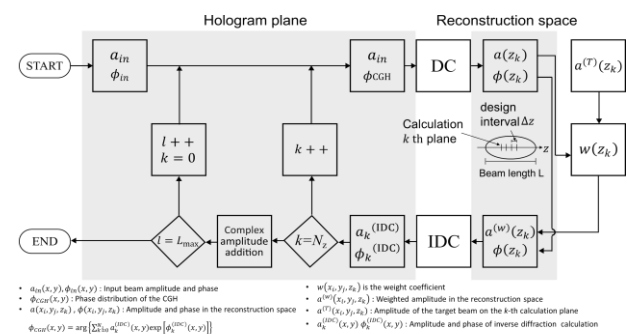


Fig. 1. Algorithm of the WGS method.

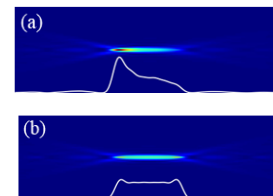


Fig. 2 Reconstructed images of the axially shaped beams: (a) failure case and (b) success case.

参考文献

- [1] H. Zhang, S. Hasegawa, H. Toyoda, and Y. Hayasaki, "Three-dimensional holographic parallel focusing with feedback control for femtosecond laser processing," *Opt. Lasers Eng.* **51**, 106884 (2022)
- [2] R. Di Leonardo, F. Ianni and G. Ruocco, "Computer generation of optimal holograms for optical trap arrays," *Opt. Express* **15**, 1913–1922 (2007).
- [3] Y. Zhao, L. Cao, H. Zhang, D. Kong, and G. Jin, "Accurate calculation of computer-generated holograms using angular spectrum layer-orient method," *Opt. Express* **23**, 25440–25449 (2015).

複数のライン集光ビームを回折する体積ホログラフィック光学素子の作製

Preparation of Volume Holographic Optical Element for Multiple Line Focus Beam Diffraction

○ 玉井 裕基¹, ○ 茨田 大輔² ° Yuki Tamai¹, ° Daisuke Barada²

1. 宇都宮大学光工学, 2. 宇都宮大学 CORE

1. Opt, Eng, Utsunomiya Univ., 2. CORE Utsunomiya Univ.

E-mail: mc236537@s.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

近年, VR/AR 技術が注目を集めているが, 装着型のデバイスにおいては長時間使用による負担を減らすために軽量化が検討されている. 三次元計測技術を併用すると, リアルタイムで空間認知や 3D モデルを生成することが可能となる. 本研究では, AR コンバイナと 3D スキャン用の光パターン生成素子を一体化させることによって, 三次元計測機能をもつ軽量の AR デバイスを作製することを目的とする. 本研究グループでは軽量でかつ広視野・広アイボックスの AR コンバイナの実現のために円筒波体積ホログラフィックコンバイナを提案してきた[1]. これは, この素子が複数のラインビームから広がる白色光をそれぞれ異なる角度で平面波として回折するような効果をもつ. この特性を利用すると, 赤外光の複数のライン集光も可能であることが考えられ, これをストラクチャードライト法で使用するパターンとして用いることが可能である. 本研究では, この光パターンを生成について検討する.

2. 複数のラインビームを生成する体積ホログラフィック光学素子の作製

シリンドリカルレンズは, 特定の軸に沿って光を集束させる特性を持つ. この特性によりレンズを通過した光が特定の軸に沿って集束し, 直線状の干渉縞が形成される. この直線状の干渉縞に対して反対側から参照光を照射すると, 横一本の回折光が観察される. 複数のライン集光ビームを生成するための体積ホログラフィック光学素子を作製する光学系を Fig. 1 に示す. 露光用の媒体に厚さ 0.3mm のフォトポリマーを用い, 波長 532nm のレーザー光を分岐して, 一方を平面波, 一方をシリンドリカルレンズによってライン集光ビームとした後に広がったビームとして, フォトポリマー上で重ね合わせて照射した. その際, 直進ステージで高さを変えながら多重露光を行った. 作製したホログラフィック光学素子に露光時に使用した平面波と逆側から He-Ne レーザー (632.8nm) の平面波を入射することによって, Fig. 2 のような回折光が確認された. 今後は赤外光で同様なパターンが生成できるか確認し, それを用いて三次元計測を行なう方法を検討する.

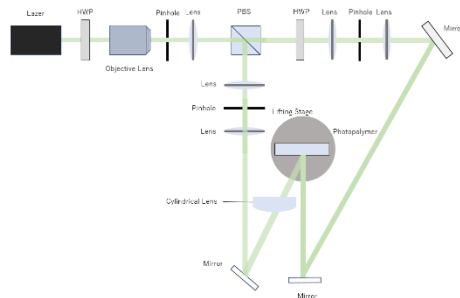


Fig.1 Optical system

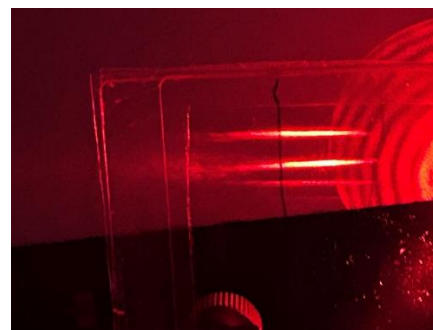


Fig.2 Diffracted light

[1] 木原健太他, OPJ2023 講演予稿集, 28pP33 (2023).

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.2】 3.2 情報フォトンクス・画像工学、4.4 Information Photonicsのコードシェア

[17p-A37-1~6] CS.2 3.2 情報フォトンクス・画像工学、4.4 Information Photonicsのコードシェア

[17p-A37-1]

機械学習を用いた位相 4 値多重記録画像の位相検出

○會澤 颯泰¹、藤村 隆史^{1,2} (1.宇大院、2.東大生研)

[17p-A37-2]

ハルトマンマスクを用いた位相信号検出精度の評価

○大塚 颯斗¹、藤村 隆史^{1,2} (1.宇大院、2.東大生研)

[17p-A37-3]

バイアス位相を用いた並列演算空間フォニックイジングマシンの検証実験

○(M1)木原 崇晶¹、下村 優¹、小倉 裕介¹、谷田 純¹ (1.阪大院情)

[17p-A37-4]

BiBO結晶を用いた高輝度量子イメージングのための並列強度相関測定を検討

○吉村 佳奈子¹、米田 成^{1,2}、的場 修^{1,2} (1.神戸大院シス情報、2.神戸大OaSIS)

[17p-A37-5]

LiDARを用いたグラデーションパターンの位置と姿勢の検出

○(M2)蓮井 翔太^{1,2}、茨田 大輔^{1,2} (1.宇大光工学、2.宇大CORE)

[17p-A37-6]

衛星画像と地上雲カメラ画像の連携解析による雲量予測

○穴田 貴康¹、遠藤 貴雄¹、土川 拓朗¹ (1.三菱電機(株))

機械学習を用いた位相 4 値多重記録画像の位相検出

Phase detection of 4-level phase modulated multiplexed images using machine learning

宇大院¹, 東大生研² ○(M1) 會澤 颯泰¹, 藤村 隆史^{1,2}

Utsunomiya Univ.¹, IIS, Univ. of Tokyo.², °Sota Aizawa¹, Ryushi Fujimura^{1,2}

E-mail: mc246550@s.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

ホログラフィックメモリーでは情報光と参照光によって形成される干渉縞分布をホログラムの形で記録媒体に保存する。この際、参照光の入射角度をわずかに変えることで同一空間に異なる情報を重ねて記録することができる（角度多重記録）。この時同一空間に記録した周囲の画像がノイズとして再生画像に影響を与え、再生信号の誤検出率 (Pixel error rate, PxER) が増加する。本研究ではこれに対し多重記録画像の復元に 3 次元の畳み込み層を導入した機械学習を導入することを検討した。本発表では、その検出精度の評価結果について報告する。

2. 方法

本研究では既知位相ピクセルを配置し、位相多値画像をシングルショットで検出する方法 [1] をベースに数値計算による評価を行なった。多重記録されたページからのクロストークノイズと、同一ページの近傍ピクセルから生じるクロストークノイズを考慮するために、Fig.1 に示すように注目ピクセルを中心とし、前後のページを含めた $3 \times 3 \times 3$ で検出光強度画像を切り取り、注目ピクセルの位相値を正解データとしてラベル付けして学習させた。(3D 学習)。

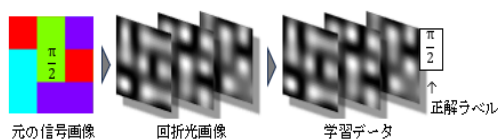


Fig.1 Example of how to create training data

3. 結果

Figure 2 にシミュレーション結果を示す。横軸はブラッグの角度選択性 (first-null) の角度で規格化した規格化角度間隔、縦軸は信号の PxER である。また比較のため、機械学習を用いない場合の位相検出 [1] とデータ形を 2 次元にした際の機械学習を用いた結果 [2] との結果を従来手法・2D 学習としてプロットしている。

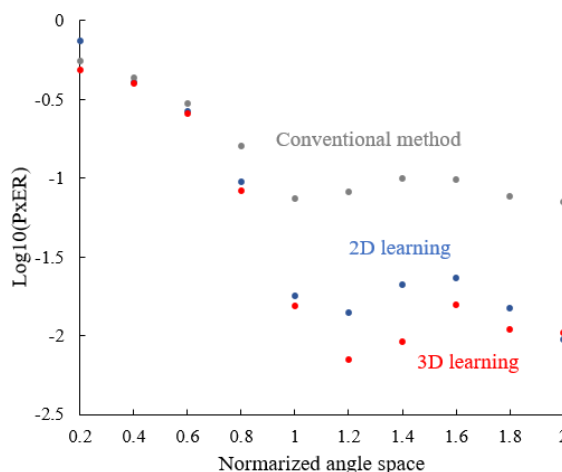


Fig.2 Comparison of PxER by detection method (Nyq=0.8)

結果より前後のページを学習に含める 3D 機械学習を行うことにより、従来よりも精度の高い信号検出が行えることがわかった。

4. 参考文献

- [1] M. Tokoro and R. Fujimura, Jpn. J. Appl. Phys. 60(2), 022004 (2021).
- [2] M. Tokoro and R. Fujimura, Photonics 10(9), 1006 (2023).

ハルトマンマスクを用いた位相信号検出精度の評価

A study of signal phase detection using a Hartmann mask

宇大院¹, 東大生研² ◯(M1)大塚 颯斗¹, 藤村 隆史^{1,2}

Utsunomiya Univ.¹, IIS, Univ. of Tokyo²

◯Hayato Otsuka¹, Ryushi Fujimura^{1,2}

E-mail: mc246522@s.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

ホログラフィックメモリーとは、情報を三次元的に保存する技術であり、大容量記録と高転送レートが期待されている。我々の研究室では、クロストークを用いたシングルショット位相検出法について研究を行ってきた[1]。ところがこの手法では既知位相ピクセルにより1ページあたりの情報ピクセル数が半分になるため、転送レートの低下は免れない。本研究では、周期的なピンホールのパターンで構成されるハルトマンマスクを用いた位相検出法に着目した。本手法では、既知位相ピクセルが不要であるため転送レートの向上を期待できる。本発表では、ハルトマンマスクを用いた差動符号化位相信号検出法をシミュレーションを用いて評価した結果を報告する。

2. 検出原理

位相情報を持つ波面はホログラフィックメモリーの信号光学系を透過することで、なだらかな波面となりハルトマンマスク (HM) に到達する (Fig. 1)。この波面の情報はHMを透過した後、ある距離 (Talbot 距離) 進んだところで格子点の位置ずれとして現れる。この位置ずれは波面の局所的な勾配の方向に移動するため、これを利用して位相情報を取得することができる。[2]

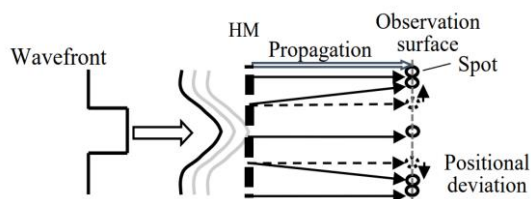


Fig.1 Phase detection principle

3. シミュレーション結果

隣接ピクセルとの位相差が 180° に近い場合、位相情報の取得において誤差が大きくなることが分かった。よって今回は、Fig.2 に示すような、隣接ピクセルとの位相差を情報とする差動符号化位相信号を利用して位相信号検出を行った。

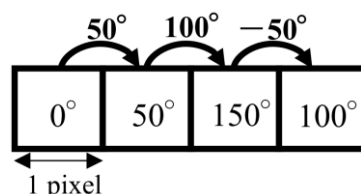


Fig. 2 Differential encoded phase

なお、今回利用する差動符号化位相信号は 11 値信号とし、隣接するピクセル間の位相差の最大値を位相差レンジと定義した。式(1)によって各位相差レンジにおける、エラーレートを求めた結果を Fig. 3 に示す。

$$\text{エラーレート} = \frac{\text{エラーピクセル数}}{\text{検出ピクセル数}} \quad (1)$$

グラフより、位相差レンジには最適値があり、 $\pm 100^\circ$ の時、最もエラーレートが小さいことが分かった。

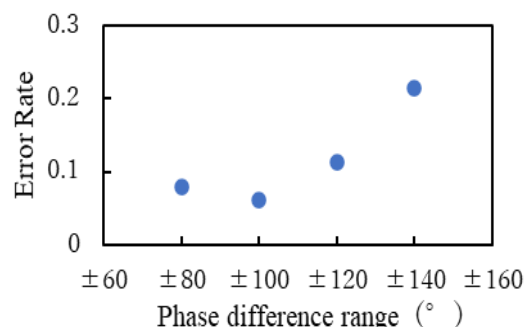


Fig.3 Error rate for each phase difference

参考文献

- [1] M. Tokoro et al., JJAP, **60**(2), 022004 (2021).
- [2] C. Kottler, et al., Opt. Express **15**(3), 1175 (2007).

バイアス位相を用いた並列演算空間フォトニックイジングマシンの 検証実験

Experimental demonstration of spatial photonic Ising machine

with parallel processing using bias-phase

阪大院情 ○木原 崇晶, 下村 優, 小倉 裕介, 谷田 純

Osaka Univ., °Takaaki Kihara, Suguru Shimomura, Yusuke Ogura, Jun Tanida

E-mail: t-kihara@ist.osaka-u.ac.jp

空間フォトニックイジングマシン (SPIM) は, 組合せ最適化問題を解く計算システムであり, 大規模な組合せを取り扱うことができる¹⁾. 本システムでは, 最適解を導出するために, 候補解に対する評価を基にして反復的に解の探索を行う. しかし, 1反復につき1つの組合せしか評価できないため, 問題規模に応じて膨大な反復回数が必要となる. 本研究ではグレーティング状のバイアス位相を用いた空間多重化により, 異なる組合せを並列に評価可能な空間フォトニックイジングマシンを構築する. 並列評価による効率的な探索により, 良い解を導出するために必要な反復回数を削減できる. 実験光学系を構築し, 最小カット問題の最適解探索を行った. 各多重化数における解精度の比較により, 提案手法の有効性を検証した.

Figure 1 にバイアス位相を用いた SPIM の概略図を示す. SPIM では, 問題設定は入射光の振幅分布 ξ で表現される. 位相変調量 $\phi_j \in \{0, \pi\}$ のバイナリー位相パターン ϕ により, 組合せはスピン配置 $\sigma = e^{i\phi} \in \{-1, 1\}$ として表現される. 2つの SLM によって振幅・位相が変調された光はレンズによって集光される. イメージセンサで集光中心の光強度を取得する. 取得される光強度は, 組合せの評価値であるイジングハミルトニアン $H = -\sigma^T \xi \xi^T \sigma = -\sum_{jh} \xi_j \xi_h \sigma_j \sigma_h$ に対応している. 光強度値が最大となるよう, 位相変調パターンの反復更新により最適解を探索する. 本研究では, 位相パターン $\phi^{(k)}$ の展開とグレーティング状のバイアス位相を用いて空間多重化を行う. 具体的には, 複数の位相パターン $\phi^{(k)}$ に対してバイアス位相を重畳することで, グレーティングの向きに応じた回折によって集光位置をシフトさせる. それぞれのスピン配置に対応したイジングハミルトニアン $H^{(k)}$ の取得により反復回数を削減でき, 解探索の高速化が可能となる.

実験では, 振幅分布 $\xi \in \{0, 1\}$ で表現されたスピン数が 100 の最小カット問題の最適解探索に適用した. 各多重化数 (N) において導出された解精度のヒストグラムを Fig. 2 に示す. 反復回数 50 回における解精度の平均を算出したところ, N=1 では 66.5%, N=4 では 76.1% となり, 多重化数に応じて解精度が向上した. 本結果より, 多重化を用いた複数の組合せの並列評価によって探索性能が向上することを実証した.

本研究は JSPS 科研費 23H04805, JST ALCA-Next JPMJAN23F2 の助成を受けたものです.

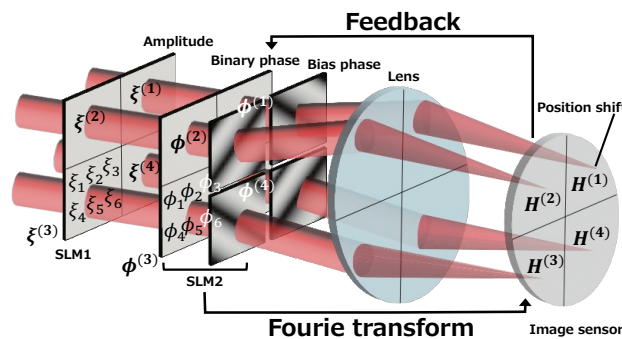


Fig. 1 Spatial photonic Ising machine with parallel processing using bias-phase.

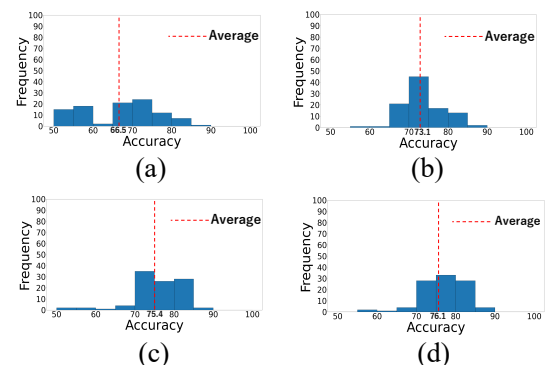


Fig. 2 Histograms of optimization accuracy for Min-cut problem with (a) N=1, (b) N=2, (c) N=3, and (d) N=4.

参考文献

- 1) D. Pierangeli, *et al.*, Large-Scale Photonic Ising Machine by Spatial Light Modulation, *Physical Review Letters* **122**, 213902 (2019).

BiBO 結晶を用いた高輝度量子イメージングのための 並列強度相関測定 of 検討

Parallel intensity correlation measurements

for high-brightness quantum imaging using BiBO crystal

神戸大院シス情報¹, 神戸大 OaSIS² ◯(M1) 吉村 佳奈子¹, 米田 成^{1,2}, 的場 修^{1,2}

Kobe Univ.¹, Center of OaSIS² ◯Kanakano Yoshimura¹, Naru Yoneda^{1,2}, Osamu Matoba^{1,2}

E-mail: 248x093x@stu.kobe-u.ac.jp

量子イメージングの一つに、量子もつれ光子対を利用する手法がある。その利点として、高い空間分解能や、古典的なノイズへの耐性などが挙げられ、近年では EMCCD (Electron Multiplying CCD) カメラを用いた並列強度相関測定によって、イメージングの効率化が図られている[1]。しかし、現在提案されている手法の多くは、量子もつれ光源の生成に一軸結晶である BBO 結晶を用いた自発的パラメトリック下方変換 (SPDC: Spontaneous Parametric Down-Conversion) が用いられている。その一方で、二軸結晶である BiBO 結晶を用いた SPDC は、その二次非線形光学定数の大きさから、高輝度な量子イメージングへの応用が期待されている[2]。本研究では、高輝度な量子イメージングの実現に向けて、BiBO 結晶を用いた量子もつれ光源に対する EMCCD カメラを用いた並列強度相関測定を行い、光源や測定方法に対する評価を行った。

作製した光学系の概念図を Fig.1 に示す。Type-I 位相整合による SPDC によって、波長 405 nm の光子から波長 810 nm の量子もつれ光子対が生成される仕様とした。結晶面に対するフーリエ面にカメラを配置し、得られた光子分布画像を用いて強度相関関数[3]を計算することにより、二光子の運動量の相関を測定した。取得した光子分布画像を Fig.2(a)に、100 万枚の光子分布画像から得られた強度相関関数を Fig.2(b)にそれぞれ示す。Fig.2(b)より、一つの光子が画素 k で観測されたとき、対となる光子は画素 $-k$ 付近に局在しており、光子間に運動量の相関があることが確認できる。発表時には、BBO 結晶を用いた場合と比較し、量子もつれ光子対の発生効率やイメージング特性について評価する予定である。

本研究の一部は、科学研究費補助金(20H05886, 23K17749)の助成を受けて実施した。

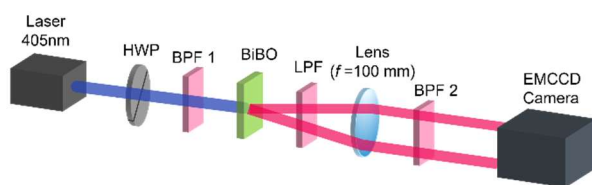


Fig.1 An optical setup. HWP : Half wave plate, BPF : Band-pass filter, LPF : Long-pass filter.

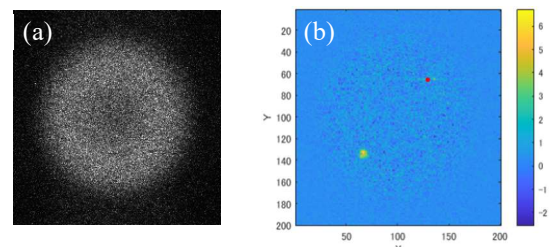


Fig.2 Experimental results: (a) Photon distribution image. (b) Intensity correlation function with (130,65) (red dot).

[1] M. Reichert, et al., Sci. Rep., 8 (2018) 7925.

[2] H. E. Guilbert, et al., J. Opt. Soc. Am. B, 32 (2015) 2096-2103.

[3] H. Defienne, et al., Nature Physics, 17 (2021) 591-597.

LiDAR を用いたグラデーションパターンの位置と姿勢の検出

Position and Posture Estimation of Moving Object with a Color Gradient

Pattern by Using a LiDAR

宇大光工学¹, 宇大 CORE² °蓮井 翔太¹, 茨田 大輔²

Opt., Eng, Utsunomiya Univ.¹ CORE, Utsunomiya Univ², °Shota Hasui¹, Daisuke Barada²

E-mail: mc236531@s.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

近年スマートフォンに LiDAR が搭載された機種が市場に出回っており、手軽に三次元形状計測が行えるようになってきた。将来的には標準的に搭載されることも期待できる。これを用いると特別な装置を用いずに三次元形状計測が行えるだけでなく、メタバース等の仮想空間に計測した物体を置くこともできる。本研究では LiDAR による勾配 (グラデーション) のあるパターンの距離計測によって、パターンのある平面の傾きを検出し、その平面内にあるグラデーションパターンの向きを検出することで位置と姿勢を検出する方法と、マーカーと組み合わせて三次元的な動きの解析に用いることを検討する。マーカーとして色の勾配 (グラデーション) のあるパターンを用いた方法を提案する。

2. グラデーションパターンの位置と姿勢の検出結果

グラデーションパターンの位置と姿勢の検出結果について以下に表す。LiDAR によって適当な位置と姿勢のグラデーションパターンの距離計測を行い、平面フィッティングを用いて、距離と傾きを検出した。それを一定間隔で正面から見たパターンに変換することにより、同じ大きさになるように補正した。グラデーションの向きについては、これまでの研究の方法によって検出可能である。この結果より、グラデーションパターンの位置と姿勢が検出できたことが分かる。今後はリアルタイムのトラッキングを目指す。

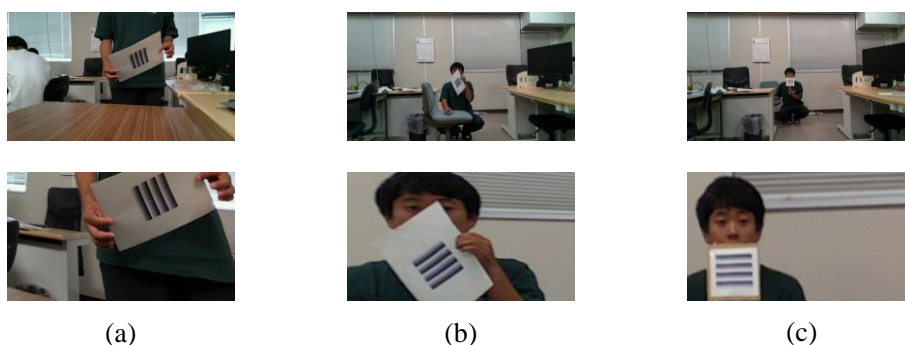


Fig.1 Original and tilt-corrected images (Distance for camera to marker (a)1m, (b)2m, (c)3m)

参考文献

- [1] 蓮井翔太, 茨田大輔 “デプスカメラを用いたグラデーションマーカーの位置と姿勢の検出,” Optics and Photonics Japan 2023, 28PD5 (2023).
- [2] Shota Hasui, Daisuke Barada “Position and Posture Estimation of Moving Object with a Color Gradient Marker by Using a Depth Camera” OPIE 2024, IP9-04

衛星画像と地上雲カメラ画像の連携解析による雲量予測

Cloud Cover Prediction by Combined Analysis of Satellite Image and Ground Cloud Camera Image

三菱電機(株)¹ °穴田 貴康¹, 遠藤 貴雄¹, 土川 拓朗¹

Mitsubishi Electric Corp.¹, °Takayasu Anada¹, Takao Endo¹, Takuro Tsuchikawa¹

E-mail: Anada.Takayasu@dc.MitsubishiElectric.co.jp

1. はじめに

カーボンニュートラル社会の実現に向けた活動の一環として、近未来(～15分後)における太陽光発電による発電量予測の精度向上を目指した活動を行っている。太陽光発電量の予測には、太陽光を遮る雲の量を予測することが不可欠である。ここでは、地上から取得した画像と衛星画像を利用し、近未来における雲量を予測する方式について報告する。

2. 構成・解析

地上からの画像としては、地上に設置した、魚眼レンズを天空に向けた可視光カメラ(雲カメラ)により定期的に取得した画像を用い、衛星画像としては、気象衛星ひまわりにより取得した可視バンドの画像を用いた。それぞれ同時に取得した画像の一例を Fig.1 に示す。それぞれから同程度の領域サイズと想定される雲の範囲を切り取り、雲を抽出して取得時刻における雲被覆率(cloud cover)を計算し、生成した時系列データの相関をとった。

3. 結果

Fig1.のそれぞれの画像データから青枠で囲った範囲の雲被覆率を計算し、時系列データを Fig2.(a)に示す。青線が雲カメラデータ、オレンジ線が衛星画像データを示す。同一地点におけるプロットなので、両者が同様の時間変化をしていることが確認できる。2つの時系列データの相互相関解析を行った結果を Fig2.(b)に示

す。時系列データに時間差なし(ラグ:0分)でピークを持つプロットが得られた。

4. まとめ

雲カメラ画像と衛星画像から抽出した同一地点における雲被覆率の時系列データにつき、変化の傾向が概ね一致する結果が得られた。衛星データを他の地点における雲被覆率時系列データに置き換えると、雲の移動に伴い相関ピークの時間差変化が見られることが想定される。

5. 謝辞

本論文の研究は東京大学が運営するデータ統合解析システム (DIAS) から取得したひまわりデータを用いて行いました。

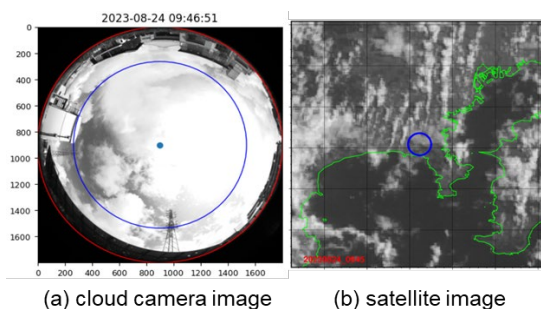


Fig1. Images taken with the cloud camera and the satellite.

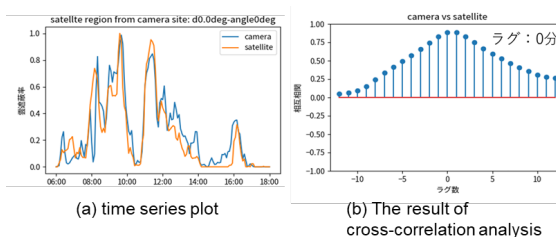


Fig2. Time series plot of cloud cover and the result of cross-correlation analysis.

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.3】 3.4 レーザー装置・材料、3.13 光制御デバイス・光ファイバーのコードシェア

[20a-A37-1~6] CS.3 3.4 レーザー装置・材料、3.13 光制御デバイス・光ファイバーのコードシェア

[20a-A37-1]

CsLiB⁶O¹⁰を用いた深紫外光波長変換における出力変化の調査(II)

○島田 恭丞¹、原 拓海¹、山本 果穂²、村井 良多³、南部 誠明²、高橋 義典³、岡田 穰治⁴、宇佐美 茂佳¹、今西 正幸¹、丸山 美帆子¹、森 勇介^{1,3}、吉村 政志^{2,3} (1.阪大院工、2.阪大レーザー研、3.創晶超光、4.スペクトロニクス)

[20a-A37-2]

CsLiB₆O₁₀結晶の深紫外光誘起吸収欠陥の調査

○大浦 龍之介¹、山本 凪²、南部 誠明¹、村井 良多³、五十嵐 裕紀⁴、中嶋 誠¹、森 勇介^{2,3}、吉村 政志^{1,3} (1.阪大レーザー研、2.阪大院工、3.創晶超光、4.ギガフォトン)

[20a-A37-3]

薄膜ニオブ酸リチウムナノ構造の製作(II)

○羽中田 祥司¹、吉田 凌一¹、馬場 俊彦¹ (1.横国大院工)

[20a-A37-4]

TFLN導波路用グレーティングカプラの構造最適化(II)

○北原 凌成¹、田原 直樹¹、馬場 俊彦¹ (1.横国大院工)

[20a-A37-5]

超低損失気体素子キャビティダンプによるパルスレーザーの高出力化

○米田 仁紀¹、道根 百合奈¹ (1.電通大レーザー)

[20a-A37-6]

オゾン気体空間位相変調器の開発

○道根 百合奈¹、米田 仁紀¹ (1.電通大レーザー研)

CsLiB₆O₁₀ を用いた深紫外光波長変換における出力変化の調査 (II)Investigation of output change on DUV light generation using CsLiB₆O₁₀ (II)阪大院工¹, 阪大レーザー研², 創晶超光³, スペクトロニクス⁴○島田 恭丞¹, 原 拓海¹, 山本 果穂², 村井 良多³, 南部 誠明², 高橋 義典³岡田 穰治⁴, 宇佐美 茂佳¹, 今西 正幸¹, 丸山 美帆子¹, 森 勇介^{1,3}, 吉村 政志^{2,3}Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.¹, ILE, Osaka Univ.², SOSHO CHOKO Inc.³, Spectronix Corp.⁴OKyosuke Shimada¹, Takumi Hara¹, Kaho Yamamoto², Ryota Murai³,Tomoaki Nambu², Yoshinori Takahashi³, George Okada⁴, Shigeyoshi Usami¹,Masayuki Imanishi¹, Mihoko Maruyama¹, Yusuke Mori^{1,3}, and Masashi Yoshimura^{2,3}

E-mail: kshimada@cryst.eei.eng.osaka-u.ac.jp

CsLiB₆O₁₀ (CLBO) 結晶を用いた深紫外光源の高出力化に向けて、長期間使用した際に生じる紫外光吸収の増加が課題の1つとなっている¹⁾。加熱処理により内部水不純物を低減させた CLBO が再び吸水すると、その後同じ加熱脱水過程を経ても出力が戻らないことを報告してきた²⁾。本研究ではこの現象のメカニズム解明を目的として、同一インゴットから作製した2つの CLBO 素子に異なる加熱処理を施した際の深紫外光出力の経時変化を調査した。

CLBO 素子 (5×5×10 mm³) を Fig.1.に示す光学系のセル内に固定し、波長 532 nm, 平均出力 20 W のピコ秒パルスレーザー光を入射して波長 266 nm の深紫外光波長変換を行った。深紫外光は連続発生ではなく、測定時にのみ発生させた。素子は 150℃に加熱し、セル内に Ar ガス (200 ml/min) を流した。まず、Fig.2.に示すように約1か月間加熱を続けて出力の経時変化を調べた (1st heating)。内部の水不純物がほぼ脱離しているこの状態で、素子を 50℃に降温してから Ar ガスを止めて3日間の吸水処理を行った。その後、再度 150℃に加熱して Ar ガスを流しながら出力変化を調べると、先行研究と同様の出力低下が確認された (2nd heating)。ただし、入力が 5 W の場合には水不純物の含有量に依らず期間全体を通して出力は一定 (約 1.1 W) であり、この低下現象は出力が高い場合に限って見られる特徴を有する。これまでの結果も踏まえ、水不純物が完全に脱離してから再吸収される際、紫外光吸収の原因となる欠陥が結晶内に形成されたと考察した。そこでこの検証を目的として、内部に水不純物が残留した状態の5日間加熱を経てから同じ吸水処理を行い、2回目の加熱脱水処理を試みた (Fig.3)。その結果、Fig.2.とは異なり、再吸収後も1回目の加熱時と同程度以上の出力が得られた。すなわち、出力低下現象は水不純物の再吸収時の結晶状態に大きく影響を受けることが明らかになった。今後はこの欠陥形成モデルの検証を進める他、CLBO の長期安定動作を実現する使用環境を模索する予定である。

本研究は NEDO 「ポスト 5 G 情報通信システム基盤強化研究 開発事業」 (JPNP20017), JSPS 科研費 JP22H01993 の助成を受けて得られた成果である。

1) 折井他, レーザー研究, **45**, 580 (2017). 2) 山本他, レーザー学会年次大会, B07-19a-VI-04 (2023).

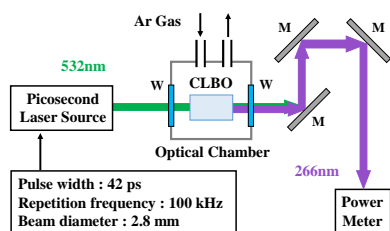


Fig.1. Experimental setup.
M: HR 266 nm mirror;
W: AR 532/266 nm window

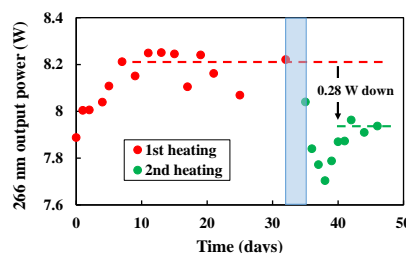


Fig.2. Change of the 266-nm output during heating process.
(1st heating: 32 days)

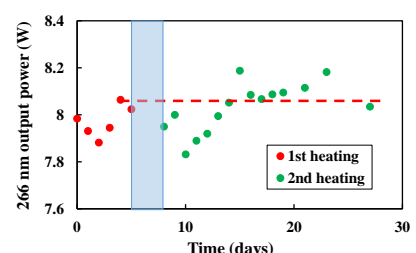


Fig.3. Change of the 266-nm output during heating process.
(1st heating: 5 days)

CsLiB₆O₁₀ 結晶の深紫外光誘起吸収欠陥の調査

Investigation of DUV-induced absorption defect in CsLiB₆O₁₀ crystal

阪大レーザー研¹, 阪大院工², 創晶超光³, ギガフoton⁴,

○大浦 龍之介¹, 山本 凪², 南部 誠明¹, 村井 良多³, 五十嵐 裕紀⁴

中嶋 誠¹, 森 勇介^{2,3}, 吉村 政志^{1,3}

ILE, Osaka Univ.¹, Grad. Sch. of Eng., Osaka Univ.², SOSHO CHOKO Inc.³, Gigaphoton Inc.⁴,

○Ryunosuke Oura¹, Nagi Yamamoto², Tomoaki Nambu¹, Ryota Murai³, Hironori Igarashi⁴,

Makoto Nakajima¹, Yusuke Mori^{2,3}, and Masashi Yoshimura^{1,3}

E-mail: yoshimura.masashi.ile@osaka-u.ac.jp

レーザー加工応用に向けて CsLiB₆O₁₀ (CLBO) 結晶を用いた深紫外光源の開発が進められているが、深紫外光の吸収が使用時に増加することが課題の1つとなっている¹⁾。これまでに二光子吸収係数を調べた報告はあるが²⁾、吸収特性が経時変化する点に着目した研究はほとんど行われていない。そこで本研究では CLBO 結晶に波長 221 nm の深紫外光を照射し、吸収特性の経時変化を調査した。

Figure1 に示す光学系を用い、光学セル内に固定した CLBO 素子に 221 nm 光を集光照射した。評価には波長 266 nm 光発生方位素子 (5×5×10 mm³, 4 面研磨) を用いた。室温 23℃, 大気雰囲気中で入射偏光は o 偏光, レンズの前の平均パワーは 5.0~30.1mW の条件で照射して透過率変化を調査した。Fig.2(a)は結果の一例であり, CLBO 素子の入出射端面の反射損失を考慮して規格化した透過率の経時変化を示したものである。透過率は照射時間が長くなると徐々に低下し、約 60 秒後にバルク損傷が確認された。この透過率低下は二光子吸収だけでは説明できないため、深紫外光によって誘起された吸収欠陥が新たに形成されたと考えられる。次に、素子を 100℃に加熱して深紫外光を 200 秒照射し、その後 1 時間の中断を挟んで照射を再開する実験を行った (Fig.2(b))。透過率は照射の中断によって回復し、吸収欠陥が熱的に緩和することが示唆された。そのため、他の光学結晶と同様の光中心 (カラーセンター) が CLBO でも形成されていると考察している。講演では透過率の低下割合の強度依存性や温度依存性についても報告する予定である。

本研究は NEDO「ポスト 5 G 情報通信システム基盤強化研究 開発事業」(JPNP20017) , JSPS 科研費 JP22H01993 の助成を受けて得られた成果である。

- 1) 折井他, レーザー研究, **45**, 580 (2017).
- 2) H. Turcicova et al., Opt. Express, **27**, 24293 (2018).

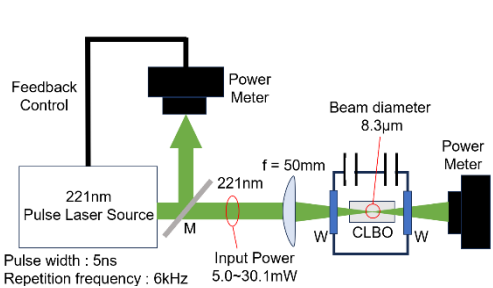


Fig.1. Schematic of experimental setup.

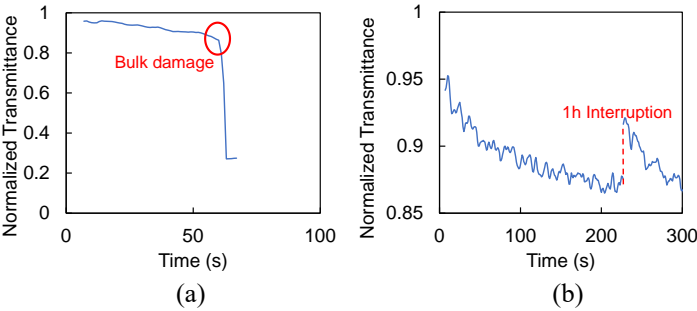


Fig.2. Transmitted power degradation through CLBO at
(a) room temperature (Input Power: 19.0mW) and
(b) 100℃ (Input Power: 30.1mW).

薄膜ニオブ酸リチウムナノ構造の製作(II)

Fabrication of Nano-Scale Thin Film Lithium Niobate Structures (II)

横国大院工 °羽中田祥司, 吉田凌一, 馬場俊彦

Yokohama Nat'l Univ. °S. Hachuda, R. Yoshida and T. Baba

E-mail : hachuda-shoji-dc@ynu.ac.jp

LiNbO₃ (LN) は大きな電気光学効果, 非線形効果, 圧電効果, 広帯域での光学透明性などの特長を有する. 薄膜LN (Thin film LN: TFLN) を利用すると, 高い光閉じ込めによる効果の増大とデバイスの小型化が可能になるため, 高性能な変調器や光コムデバイスなどが研究されている¹⁾. ただし, LNはドライエッチングが難しく, 端面形成技術も十分には確立されていない. 我々は当面, SSCファイバカプラの利用が困難と考え, グレーティングカプラによるファイバ結合を検討している²⁾. 前回はAr ICPエッチングによるTFLNの加工を試み, エッチングレートが17 nm/minで, 深さ170 nmのグレーティングを報告した³⁾. 今回はエッチング装置を変更し, より高レートのエッチングで初期的な光デバイスを製作した.

Fig. 1にプロセス概要を示す. マスクには高エッチング耐性をもつFOX16レジストを, エッチングにはSamco, RIE-200ipを, マスクや堆積物除去にはBHFとアンモニア処理を用いた. 低ガス圧でエッチングレートが向上するという報告があるため⁴⁾, 最低圧が0.1 Paに設定したところ, エッチングレートが24 nm/minまで向上した. 厚さ900 nmのレジストを用いて製作したラインの断面を結果をFig. 2に示す. レジスト厚さは360 nmと十分残っており, 1 μm幅のグレーティングが形成できた. このときの側壁角度は78°である.

初期的な光デバイスとして, 光量子インターフェイスを想定した1次元フォトニック結晶導波路 (1D PCW) とグレーティングカプラを製作した結果をFig. 3に示す. 今後は光の結合や伝搬の確認を行う予定である.

参考文献

1) M. Zhang, et al, Optica, **8** (2021) 652.

2) 北原ら, 応物春季 (2024) 22p-12A-4.

3) 吉田ら , 応物春季 (2024) 22p-12A-5.

4) F. Kaufmann, et. al., Nanophotonics, **12** (2023) 1601.

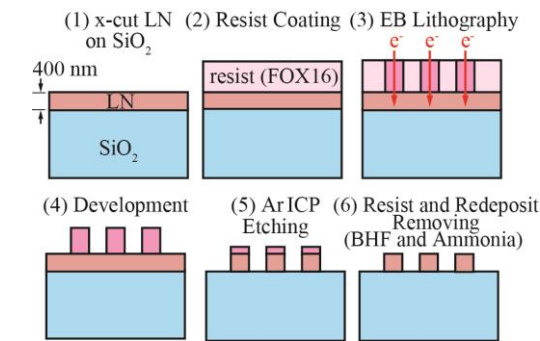


Fig. 1 Fabrication flow of TFLN nanostructure.

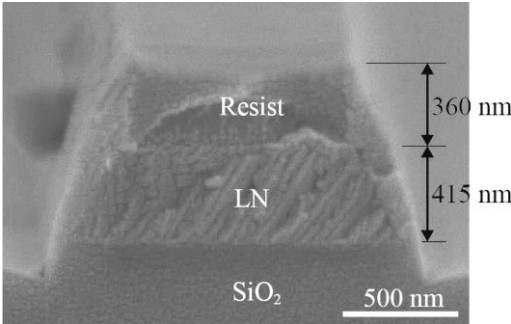


Fig. 2 SEM image of Ar-ICP etched LN line.

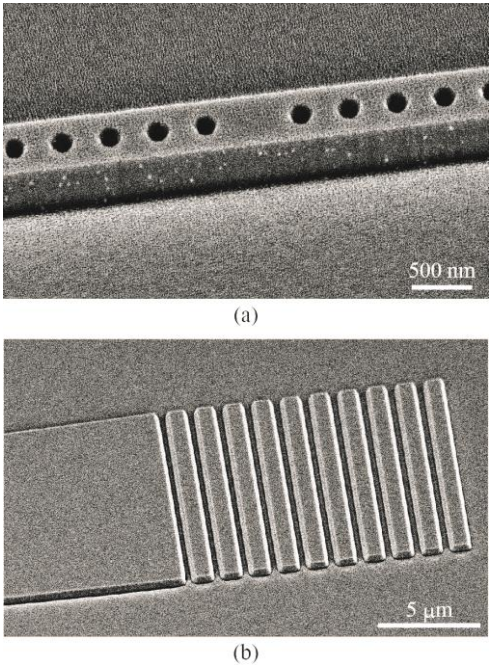


Fig. 3 SEM images of TFLN nanostructure. (a) 1D PCW and (b) grating coupler.

TFLN 導波路用グレーティングカップラの構造最適化(II)

Structural Optimization of Thin-Film LNOI Waveguide Grating Couplers (II)

横国大院工 ○北原凌成, 田原直樹, 馬場俊彦

Yokohama Nat'l Univ., °R. Kitahara, N. Tahara, T. Baba

E-mail: kitahara-ryosei-gd@ynu.jp

薄膜ニオブ酸リチウム (TFLN) 導波路を用いた高速光変調器や高効率非線形デバイスが開発されており, 次世代の光集積プラットフォームの可能性が注目されている [1,2]. しかし, 単一モードファイバとの高効率な結合のための SSC は端面形成が難しい. 図 1(a)のようなグレーティングカップラについても, 上下対称放射やモード不整合があるため結合効率が 30%台と低く, 高効率化が課題であった [3]. 前回, 我々は2段階エッチングでの製作を想定して, 効率 60%の構造を計算したが [4], 実験で使われるような SiO_2 オーバークラッドを想定していなかった. これを想定すると効率が低下するが, 今回, さらに最適化を進め, 効率 64% (損失 2 dB 以下) の構造を見出したので報告する.

過去の研究を参考に, TFLN の厚さは $0.6\ \mu\text{m}$, 上部と下部のクラッドは厚さ $4.7\ \mu\text{m}$ の SiO_2 層とした [1]. 波長 $1550\ \text{nm}$ において導波路鉛直方向から -8° 傾けたファイバとの結合を最大化するように, Lumerical FDTD 光伝搬シミュレーションと共分散行列適応進化戦略 CMA-ES の組み合わせ [5]によって構造を最適化した. Ar による TFLN のエッチング加工を想定して水平面からの側壁角を典型的な 60° に固定し, 浅堀エッチングと深堀エッチングのサイズと位置, ならびにファイバの位置を自由パラメータとした. グレーティングカップラを横から見た 2 次元構造の最適化結果の一例が図 1(b)である. 複雑な形状になっているが, 2 回のエッチングのマスクパターンを工夫することで, 製作可能な構造になっている. 図 2(a)の放射光のシミュレーション結果を見るとわかるように, 光が上方のファイバの方角に強く放射されている. 図 2(b)がファイバへの結合効率スペクトルであり, 波長 $1550\ \text{nm}$ における結合効率は 64%となった. 側壁角が向上すると, 最適化の自由度が高まり, より高い効率が期待できる.

参考文献 [1] D. Renaud, et al., Nat. Commun., **14**, 1496 (2023). [2] A. Boes, et al., Science, **379**, 6627 (2023). [3] D. Zhu, et al., Adv. Opt. Photon., **13**, 242 (2021). [4] 北原ほか, 応物春季, 22p-12A-4 (2024). [5] N. Tahara, et al., IEEE Si Photon. Conf., WC4 (2024).

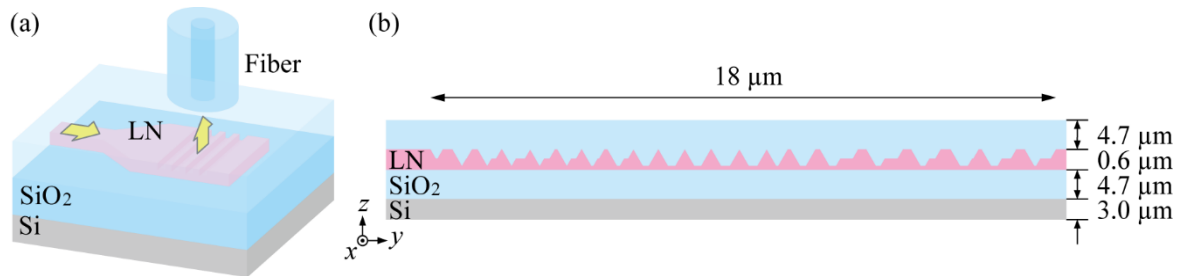


図 1 TFLN 導波路グレーティングカップラ構造. (a) 概念. (b) 最適化した構造の一例.

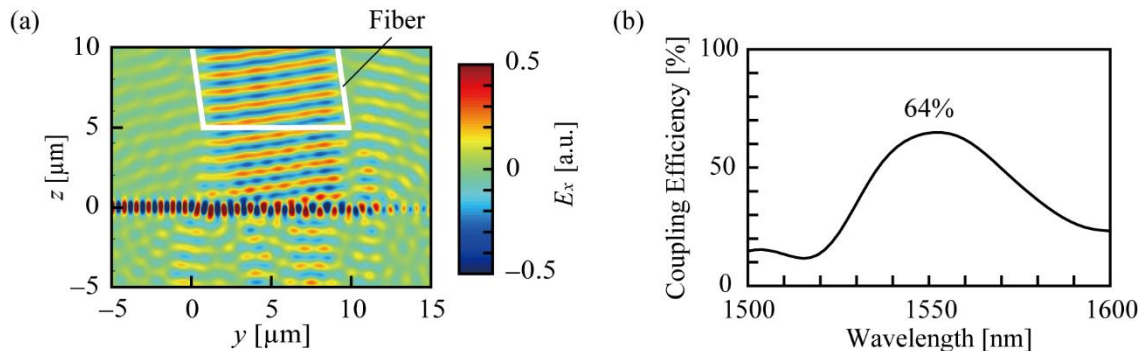


図 2 計算結果. (a) 波長 $1550\ \text{nm}$ の光伝搬シミュレーション結果. (b) 単一モードファイバへの結合効率スペクトル.

超低損失気体素子キャビティダンプによるパルスレーザーの高出力化

High power operation of cavity dumped pulse laser with ultra-low loss switch

電通大レーザー ○米田仁紀, 道根百合奈

Institute for Laser Science, University of Electro-Communications

E-mail: yoneda@ils.uec.ac.jp

現在、多くの方法でパルスレーザーが発生されている。特に超短パルスレーザーの領域では、モードロック発振器とパルスピッカー、CPA による増幅というものが確立した方法となっている。この方法では、発振器からの出力は、最も安定で決められた形を保っているものの、多くの場合、多数発生している多くのパルスのうち、1 つだけを取り出し、後は捨てている状況にある。このパルス列はコヒーレントに結合されているので、共振器などで再度貯めこむことが可能で、これを取り出せれば、高い効率で大きなパルスエネルギーを出すことが出来る。この時鍵となるのは、ため込む強度は共振器の Q 値に依存し、貯めこまれた光を出すためには高速のスイッチが必要となることである。通常光のスイッチには EO や AO などを利用したものが使われるが、残念ながらこれでは高い Q の共振器にマッチしない。そこで、我々は、開発した気体光学素子のスイッチを用い、その可能性の実験と実証を行っている。

これまでに、気体光学スイッチを入れた 1m 程度の共振器で、損失は 11ppm 程度に抑えられることがわかり、また実際取り出すことにも成功し、入射光として 100mW レベルの光を共振器内で 100W 程度とし、それを一気に取り出し 1 μ J 級のパルスレーザーの発生に成功している。(右図参照)

この次の段階として、高エネルギー化を行うために、入射レーザーのパワーをファイバーアンプを増強することにより 2 桁程度まで増加させ実験を行っている。ここでは、高出力化にもなう共振器蓄積の問題や、波面乱れの影響などが明らかになると予想している。詳細は講演時に述べる。

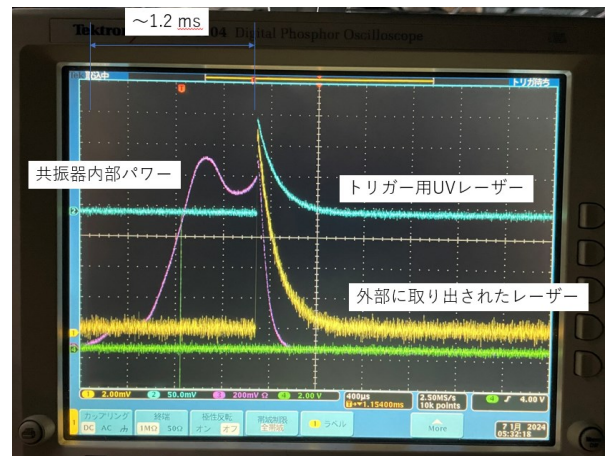


図1 蓄積された共振器内強度モニターの信号と、気体光学スイッチにより取り出されたパルスレーザーの信号

オゾン気体空間位相変調器の開発

Development of ozone gas spatial phase modulator

電気通信大学レーザー新世代研究センター °道根 百合奈, 米田 仁紀

Institute for Laser Science, University of Electro-Communications

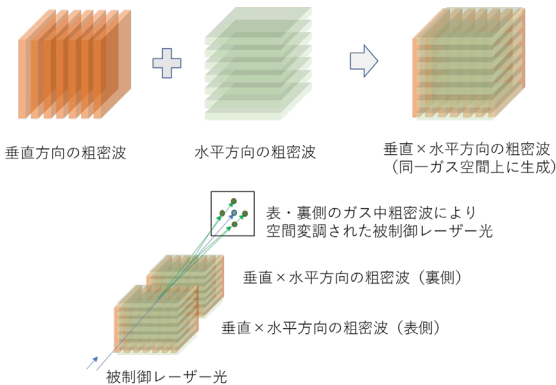
°Yurina Michine and Hitoki Yoneda

E-mail: y_michine@ils.uec.ac.jp

ファイバーレーザーや固体レーザーの高平均出力化が進んだことにより、自動車産業、半導体リソグラフィなどでレーザーの利用が盛んになってきている。レーザーによる材料加工・表面処理分野では、連続発振レーザー出力で 100kW を超えるものも開発され、従来の切断・穴あけ等の機械加工からの置き換えが加速している。一方で、レーザーシステムで使用される光学素子に関しても、液晶や MSMS などレーザーの波面そのものを制御する素子も出てきている。しかし、低出力・低強度のレーザーに対する応用に限られており、近年のレーザーの高出力化に全く追従できてない。液晶空間変調器は、入力レーザー波面の位相を自由に変化させることが可能であるため、空間モードの変形、多点加工への対応、時間波形の変調などの応用に使われるようになってきたが、市販レベルのパルスレーザー出力をそのまま入射することすらできない、限られたレーザー耐力となっている。

このような状況で、我々はこれまでの固体素子から脱却し、気体を媒質にした素子にすることで素子損傷を気にせず使用できると考え、開発を進めてきた。我々が開発しているオゾン混合気体中の大振幅の密度変調を利用して開発した気体回折光学素子では、わずか $60\text{mJ}/\text{cm}^2$ の紫外レーザーで生成でき、固体光学素子よりも 2 桁程度高い $1600\text{J}/\text{cm}^2$ のレーザー耐力、 $\lambda/10$ の高精度な波面精度、96% もの高い平均回折効率を実証している[1]。

これらの原理実証された気体光学素子を発展させ、既存の液晶などの空間光変調素子と同等な機能を持つ高強度産業用レーザー用のシステムを開発したいと考えている。具体的には、多点集光・高速スキャン・波面補正を同時に行う光位相変調システムである。現在はほぼ単一波長の粗密波で形成されている気体光学素子を、自由な空間変調が可能な素子に改良する必要がある、これが可能であるのか、実験的な検討を行った。図 1 はその概念になる。同一気体空間内に垂直・水平方向の 2 種類の粗密波を紫外レーザーにより励起し、この組み合わせを気体層の表側・裏側の両方から行う。そこに被制御レーザーを入射すると、1 本のレーザー光が分岐し、まるで通常の空間位相変調器のようにビーム分割できるというものになる。講演では、回折後の 4 つの空間変調されたレーザーが効率よく分離できることを示す。将来的には、このようにして作られた多重化書き込みのオゾン空間変調器に、1J 級のパルスレーザーを入射させ、4 つの異なる位置でのレーザー加工が行えれば、多点加工などへの対応がアピールできるようになっていくと考えている。



参考文献: [1]Y.Michine and H.Yoneda, Communications physics 3, 24 (2020).

図 1 : 2 次元 × 2 方向の粗密波生成

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.4】 3.10 フォトニック構造・現象、3.11 ナノ領域光科学・近接場光学のコードシェア

[19a-A33-1~11] CS.4 3.10 フォトニック構造・現象、3.11 ナノ領域光科学・近接場光学のコードシェア

[19a-A33-1]

シリコンピラミッドを用いた熱放射取出しによる熱輻射増強

○(M2)細川 竜牙^{1,2}、鳶田 悦子¹、石井 智^{1,2} (1.物材機構、2.筑波大)

[19a-A33-2]

プラズモニック共振器からの角度選択性熱放射

○清水 信¹、Benlyas Rihab¹、Liu Zhen¹、湯上 浩雄¹ (1.東北大院工)

[19a-A33-3]

シリコンメタサーフェスのFabry-Pérot BICを利用した近赤外狭帯域光電流増強

○森朝 啓介¹、長谷部 宏明¹、杉本 泰¹、藤井 稔¹ (1.神戸大院工)

[19a-A33-4]

カゴメ格子らせん積層型高次ワイルフォノニック結晶の設計

○秦 佑介¹、鶴田 健二¹ (1.岡山大院自然)

[19a-A33-5]

金属ナノ構造装荷による軌道角運動量光導波路の形成

○来馬 龍治^{1,3}、滝口 雅人^{2,3}、Haidt Peter³、森竹 勇斗¹、納富 雅也^{1,2,3} (1.東工大理、2.NTT NPC、3.NTT物性基礎研)

[19a-A33-6]

イットリウム鉄ガーネットを母材としたH1型フォトニック結晶ナノ共振器の作製

○谷口 公太¹、北井 達也¹、山家 健¹、高 思源¹、岩本 敏²、太田 泰友¹ (1.慶應理工、2.東大先端研)

[19a-A33-7]

イットリウム鉄ガーネットに基づく磁気光学マイクロディスク共振器の作製と評価

○(M1)山家 健¹、北井 達也¹、谷口 公太¹、高 思源¹、今村 陸¹、熊崎 基¹、藤井 瞬¹、田邊 孝純¹、岩本 敏²、太田 泰友¹ (1.慶應理工、2.東大先端研)

[19a-A33-8]

Optical Rectenna Based on a Hollow Resonator for Mid-Infrared Energy Harvesting

○Zhen Liu¹、Yuji Oka¹、Makoto Shimizu¹、Hiroo Yugami¹ (1.Tohoku Univ.)

[19a-A33-9]

光ヘテロダイン光熱変位法によるマイクロピラーとホールの熱物性評価

○岩切 孝洋¹、原田 知季¹、石井 智²、碓 哲雄¹、福山 敦彦¹ (1.宮崎大工、2.物材機構)

[19a-A33-10]

銀ナノ粒子電極を装着した熱電変換素子の特性評価

○(M2)爲廣 英純¹、久保 若奈¹ (1.東京農工大学)

[19a-A33-11]

磁気光学薄膜上におけるBIC モードスローライト導波路の検討II

○谷村 優太¹、石井 佑樹¹、上村 高広²、岩本 敏³、太田 泰友¹ (1.慶應理工、2.東工大、3.東大先端研)

シリコンピラミッドを用いた熱放射取出しによる熱輻射増強

Enhancing thermal radiation by thermal extraction of silicon micropyramids

物材機構¹, 筑波大² ○(M2) 細川 竜牙^{1,2}, 鷹田 悦子¹, 石井 智^{1,2}

NIMS¹, Univ. of Tsukuba.², °Ryugo Hosokawa^{1,2}, Etsuko Shimada¹, Satoshi Ishii^{1,2}

E-mail: hosokawa.ryugo@nims.go.jp

近年、日中放射冷却素材^[1]や放射冷却を利用した環境発電^[2]などの研究が活発になっている。しかし、熱放射は温度の4乗に比例するため、300 K 付近の屋外での放射冷却能力は 100 W/m² 程度に限られる。もし温度一定で熱放射を増大させることができれば冷却能力は向上するが、その方法の一つとして高屈折率の半球を熱放射面に被せる方法がある^[3]。この方法では、半球半径を半球の屈折率と熱放射面の半径の積とすることで、全反射を低減して熱放射取出し効率を最大化するため、熱放射面が大きくなるに従って半球は高くなる。そこで、中赤外域の屈折率と透過率が高いシリコン(Si)上にピラミッド構造を作製することで、熱放射取出し構造を薄く出来るかを計算と実験から検討した。

有限要素法に基づく数値計算では、300 K の黒体放射強度で重みづけした双極子からの放射を熱放射として模擬し、中赤外の波長域について電場強度を積分することで熱放射強度を見積もった。表面にピラミッド構造がある Si 中の双極子から真空中への放射強度を計算し、その値を平坦な Si の場合で規格化したものを Fig. 1. (a)に示す。Fig. 1. (a)より、ピラミッド構造があることで真空中への熱放射取出しが増強していて、最適なピラミッド幅が存在することが分かる。実験では、厚さ 500 μm 大きさ約 1 cm 角の Si 基板をウェットエッチングしてミクロンスケールのピラミッド構造(Fig. 1. (b))を作製した^[4]。ピラミッド構造による熱放射取出しは、熱流束計を用いた真空中での測定で評価した。その結果、ピラミッド構造がある Si 基板は平坦な Si 基板や Si 基板がない場合より、熱流束計が大きな値を示した。これらの計算と実験は、Si ピラミッド構造が従来よりも薄い構造であるにも関わらず、熱放射取出しによる熱輻射増強が可能であることを示唆する。

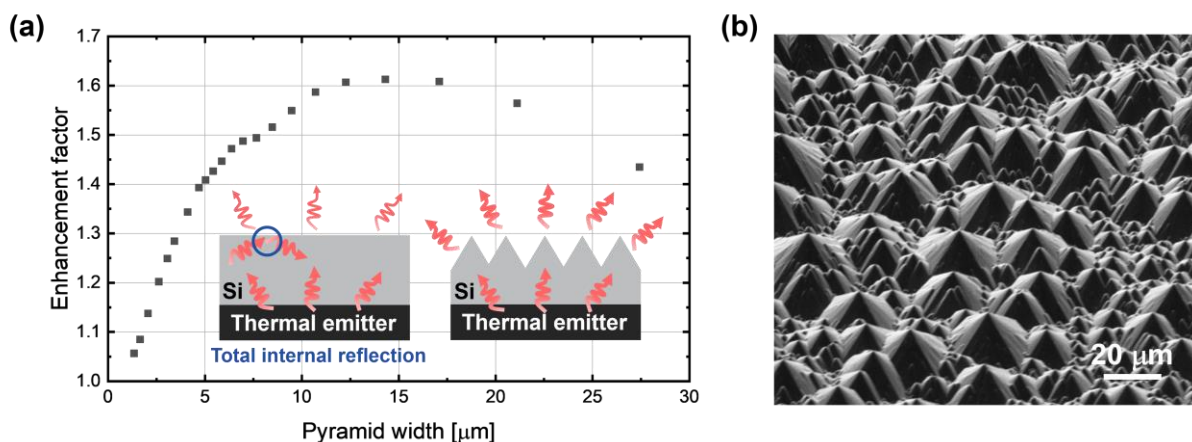


Fig. 1. (a) Enhancement factor of Si pyramids plotted against Si pyramid width. The enhancement factor is the radiation intensity of the Si pyramid normalized by that of planar Si. (b) SEM image of Si pyramids.

参考文献:[1] T. Li et al., Science **364**, 760 (2019); [2] S. Ishii et al., Materials Today **75**, 20 (2024); [3] Yu, Z., et al., Nat Commun. **4**, 1730 (2013); [4] B. L. Sopori et al., Solar Cells **8**, 249 (1983).

プラズモニック共振器からの角度選択性熱放射

Angular selective thermal radiation from plasmonic resonator

東北大院工¹ ○清水信¹, Rihav Benlyas¹, Liu Zhen¹, 湯上浩雄²

Tohoku Univ.¹, [○]Makoto Shimizu¹, Daisuke Matsuura¹, Toshinori Kado¹, Hiroo Yugami¹

E-mail: makoto.shimizu.a3@tohoku.ac.jp

【はじめに】細構造を表面に形成することで物体の表面フォノンや表面プラズモンとの結合により狭い波長域において指向的な熱放射を可能とする放射体がこれまでも実現されている^[1]。しかし、指向的な輻射熱輸送を実現するためには、幅広い波長域での熱放射と指向的な熱放射を両立させる必要がある。この特性は、高分子薄膜の分子振動モードを利用したものや^[2]、複数種類の誘電体薄膜を積層することで実現できることが報告されている^[3]。しかし、これらは物質固有の特性を利用しているため、放射波長域のさらなる広帯域化や波長域の任意制御は難しい。本研究では共振器の共振モードと誘電体薄膜における Leaky モードを結合させることでプラズモニック共振器における角度選択性熱放射を実現した。

【実験】金属—誘電体—金属（MDM）構造を持つプラズモニック共振器に対して、Rigorous Coupled-Wave Analysis 法を用いた光学シミュレーションにより吸収率の角度依存性を解析した。尚、キルヒホッフの法則から吸収率は放射率と等しいと考えられる。また、シミュレーションモデルと同様の構造を作製し、熱放射の角度特性を評価した。

【結果と考察】誘電体の膜厚を波長に比べて十分薄くすることで Leaky モードが生じ、共振器の共振波長に対応したピークが面水平方向と近い高角度において高い放射率を有することが明らかとなった。その値は一般の金属表面において見られる高角度での放射率上昇よりも大きくなっており（Fig. 1）、プラズモニック共振器の効果であると言える。また、この放射特性は実験的にもシミュレーション結果とよく一致することを実証した^[4]。

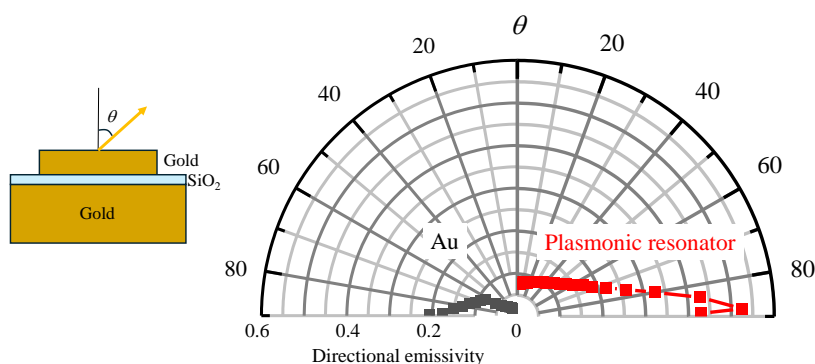


Fig.1 Schematic image of a directive multiband thermal emitter based on MDM metamaterial structure (Left) and simulation result of spectral absorptance vs incident angles (Right).

参考文献

[1] J.J. Greffet et al., Nature, 416 (2002) 61. [2] S. Tsuda et al., Opt. Express, 26, 6899 (2018). [3] A. J. Xu et al., Science, 372, 393 (2021). [4] R. Benlyas et al., Opt. Express, 30, 9380 (2022).

シリコンメタサーフェスの Fabry-Pérot BIC を利用した 近赤外狭帯域光電流増強

Photocurrent Enhancement via Fabry-Pérot BICs in Silicon Metasurface on Mirror for NIR Photodetection

神戸大工¹, °森朝 啓介¹, 長谷部 宏明¹, 杉本 泰¹, 藤井 稔¹

Kobe Univ.¹, °Keisuke Moriasa¹, Hiroaki Hasebe¹, Hiroshi Sugimoto¹, Minoru Fujii¹

E-mail: fujii@eedept.kobe-u.ac.jp

波長1400 nm以上の近赤外光はアイセーフ領域と呼ばれ、網膜に対する最大許容露光量が他の波長域に比べて大きいため車載用LiDARの動作波長として採用されている。そのためこの波長域までシリコンベースの受光素子の感度帯を拡張する研究が広く行われている[1]。そのなかで我々のグループはバンドギャップ内の欠陥準位を介した微弱な光吸収を光学共鳴により増強する機構に着目した。特に、非常に薄いシリコンのナノディスクの六方格子アレイ構造のトロイダル双極子共鳴が消光係数の小さい波長領域において光吸収を大きく増強することを見出し、1.5 μm 帯における光電流増強を報告した[2]。

以前に報告した構造は、光吸収率の理論値が最大で 50% であった。本研究では光吸収率の理論値が最大 100% の構造を提案する(図 1)。シリコン薄膜上に形成したナノディスクアレイ下部にシリカスペーサ(厚さ $\sim 1 \mu\text{m}$)を介して金属ミラーを配置している。適切なスペーサ膜厚において、ナノディスクに誘起されるトロイダル双極子と逆位相の鏡像双極子が干渉することにより遠方場への輻射が完全に抑制される Fabry-Pérot bound states in the continuum (FP-BICs)が発現する。図 2(a)に吸収スペクトルのスペーサ膜厚(S)依存性を示す。1460 nm 付近のピークはトロイダル双極子共鳴に由来している。この吸収はスペーサ膜厚が 800 nm の場合に FP-BIC となり消失する。一方、スペーサ膜厚が 940 nm, 540 nm では臨界結合条件を満たすことにより、吸収率は 99%以上に達している[3]。図 2(b)にスペーサ膜厚が 940 nm の場合の電場分布を示す。光電場はシリコン層に局在化しており、光電流の増強が期待できる。本発表では光吸収増強のメカニズム及び光電流の増強効果について理論と実験の両面から議論する。[1] Casalino, M., et al., Laser & Photonics

Reviews, Vol. 10, Issue. 6, 895–921, 2016. [2] Hasebe, H., et al., ACS Photonics, Vol. 9, Issue. 10, 3302–3309, 2022. [3] Moriasa, K., et al., Journal of Applied Physics, Vol. 133, Issue. 17, 173102, 2023.

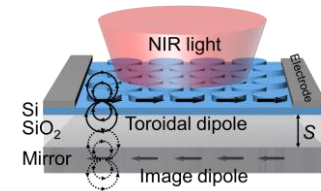


Fig 1. Schematic of Si metasurface on mirror structure. The interference between a Toroidal dipole and its mirror image leads to the formation of FP-BIC.

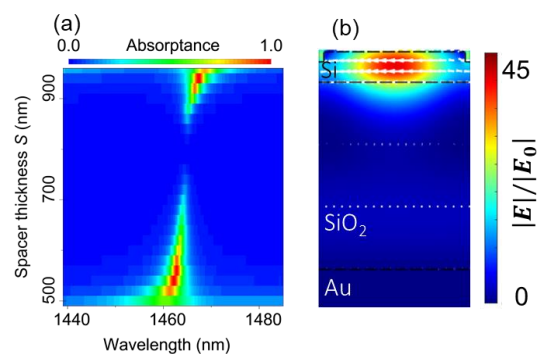


Fig 2. (a) Calculated absorptance spectra of the structure in Figure 1 as a function of spacer thickness (S). (b) Electric field distribution at 1467.4 nm ($S = 940 \text{ nm}$)

カゴメ格子らせん積層型高次ワイルフォニック結晶の設計

Design of a Higher-order Weyl Phononic Crystal based on a Spiral Stacked Kagome Lattice

岡山大院自然¹, [○](D) 秦 佑介¹, 鶴田 健二¹

Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama Univ.¹,

[○]Yusuke Hata¹, Kenji Tsuruta¹

E-mail: tsuruta@okayama-u.ac.jp

トポロジカルフォニック結晶は、曲げや欠陥に対してロバストな境界状態を作り出せるため、弾性波を高効率に伝播させる導波路等の設計に有用であると注目されている [1]。特に近年になって提唱された高次トポロジカル絶縁体は、さらに低次元の境界にロバストな状態が発現するので、弾性波系に模擬することで 3 次元空間に集積させることが可能となる。我々はこれまでにカゴメ格子を垂直方向に積層させることで、層間を伝搬するヒンジモードを有する 3 次元フォニック結晶の設計・作製を報告してきた [2]。今回、カゴメ格子をらせん状に積層させることでヒンジモードを有する高次ワイルフォニック結晶の設計について報告する。高次ワイル半金属は一对のワイル点を結ぶようにヒンジアーク状態が存在するため [3][4]、特定の波数の弾性波のみを伝播させることができる導波路を設計することができる。

本研究で設計する単位格子の模式図を Fig. 1(b) に示す。六角形の副格子は幅 $w_1 \cdot w_2$ のボンドで面内方向に接続されている。さらに、 $+z$ 方向には自身を 120° 回転させた先の副格子と、 $-z$ 方向には -120° 回転させた先の副格子とそれぞれらせん状に結合している。らせん状のボンドが加わることで k_z によって実効的な w_1 の値を変化させることができる。我々はこの単位格子をタイトバインディング法でモデル化し、数値解析でエネルギーバンド図を求めた (Fig. 1(c))。トポロジーに寄与する 2 つのモードの周波数が k_z に対してそれぞれ振動しており、赤破線で示した波数においてワイル点が発生している。この単位格子を 6×6 のスーパーセルに拡張してエネルギーバンド図を求めると (Fig. 1(d))、 k_z によってヒンジモードの有無が変化していることがわかる。講演では Fig. 1(b) のような構造について弾性波系での詳細を報告する。

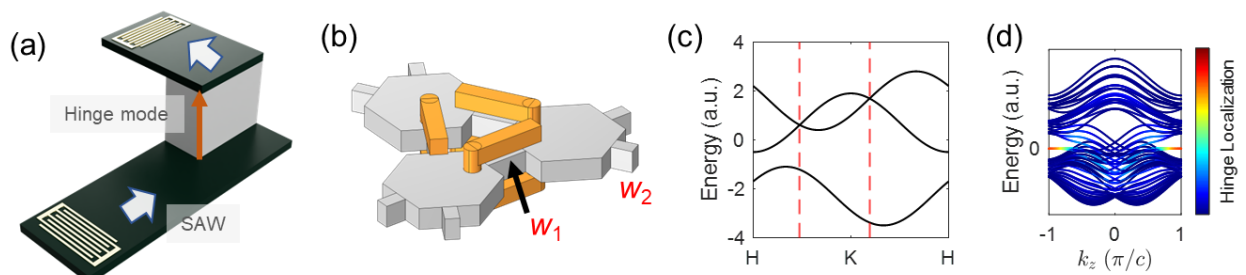


Fig. 1 (a) A schematic of elastic device with waveguide perpendicular to substrate. (b) A unit cell of phononic crystal. Gray and orange region indicate 2-dimensional Kagome phononic crystal and additional spiral bonds, respectively. (c) Energy band diagram of unit cell constructed by tight-binding model. Red dashed lines represent wavenumber where Weyl points appear. (d) Energy band diagram of 6×6 supercell constructed by tight-binding model. Colorbar indicates how much each eigenstate is localized at the hinges.

謝辞：本研究の一部は科学研究費補助金（課題番号 JP21H05020）の支援のもとで実施された。

参考文献：[1] B. Xie *et al.*, *Nature Rev. Phys.* **3**, 520 (2021). [2] Y. Hata *et al.*, 2023 *IEEE International Ultrasonics Symposium (IUS)*, Montreal, QC, Canada, 2023, pp. 1-3. [3] Q. Wei *et al.*, *Nat. Mater.* **20**, 812-817 (2021). [4] L. Luo *et al.*, *Nat. Mater.* **20**, 794-799 (2021).

金属ナノ構造装荷による軌道角運動量光導波路の形成

OAM optical waveguides created by loading metal nanostructures

¹東工大理, ²NTT NPC, ³NTT 物性基礎研 [○]来馬 龍治^{1,3}, 滝口 雅人^{2,3}, Heidt Peter³, 森竹 勇斗¹,
納富 雅也^{1,2,3}

¹Tokyo Tech, ²NTT NPC, ³NTT BRL, [○]Ryuji Kuruma¹, Masato Takiguchi^{2,3}, Peter Heidt³, Yuto Moritake¹
and Masaya Notomi^{1,2,3}

E-mail: kuruma.r.ab@m.titech.ac.jp

螺旋状の波面を有する光渦は、軌道角運動量(OAM)を持ち光軸付近には位相の特異点を持ち、光渦の光学特性を用いて、近年ナノ物質の回転制御、大容量情報通信などへの応用研究が進んでいる。従来の光渦発生法は、ホログラム、螺旋位相板などサイズの大きい素子が必要であった。最近、チップデバイスへの応用のため、メタサーフェス^[1]やリング共振器^[2]を用いた数 $10\mu\text{m}$ サイズのデバイスが実現されているが、サブミクロンサイズのデバイスは未だ実現されていない。我々は前回、GaN 多角形中空ナノワイヤ構造^[3]に金属ナノピラーを近接させて、鏡映対称性を壊す複素変調を加えることで、OAM を持つモードを生成できることを示した^[4]が、今回この原理を導波路に適用し、集積光技術で作製可能な矩形導波路構造で解析を行った。その結果、矩形導波路構造でも OAM を持つモードを形成できることがわかったので報告する。

本研究では有限要素法の導波モード計算を用いて、1 辺がサブミクロンサイズの正方形 Si 導波路に金属(Au,Ti,Cr)ワイヤを近接させ、OAM を持つモードを探索した。(fig.1(a))その結果、正方形の鏡映対称性を壊す場所にワイヤを配置したときに大きな OAM を持つモードを発見した。さらに、1つの金属ワイヤの位置と大きさを製作可能な条件のもとで金属ワイヤの大きさと位置、波長(1250~1550nm)を最適化した結果、Si 導波路と Cr ワイヤの系で fig.1(b)のような OAM モードの生成に成功した。(波長:1460nm,有効屈折率: $2.71\text{--}5.40\times 10^{-2}$,伝播損失: $-1.01\times 10^3[\text{dB/mm}]$)続いて、導波路の形状を矩形にし、矩形の横幅も最適化した結果、fig.2 のような OAM が大きく、伝播損失の小さい解が得られた。(波長:1330nm,有効屈折率: $3.14\text{--}2.76\times 10^{-4}$,伝播損失: $-5.67[\text{dB/mm}]$)さらに、各モードの縦波成分(Ez)と横波成分(Ex,Ey)を比較すると、横波成分の OAM スペクトルのピーク次数と縦波のピーク次数が絶対値 1 だけ異なることもわかってきた。

この構造は、サブ波長径のナノワイヤ内の導波モードそのものが軌道角運動量を持つようになるため、従来の OAM デバイスよりサイズが小型化でき、異なる応用も期待できる。講演では、具体的な構造と最適化手法、OAM を持った各モードの特徴を紹介するとともに、OAM 発生の物理機構についても触れる。本研究は、科学研究費補助金 (20H05641,24K01377,JP24H02232) の援助の下に行われた。

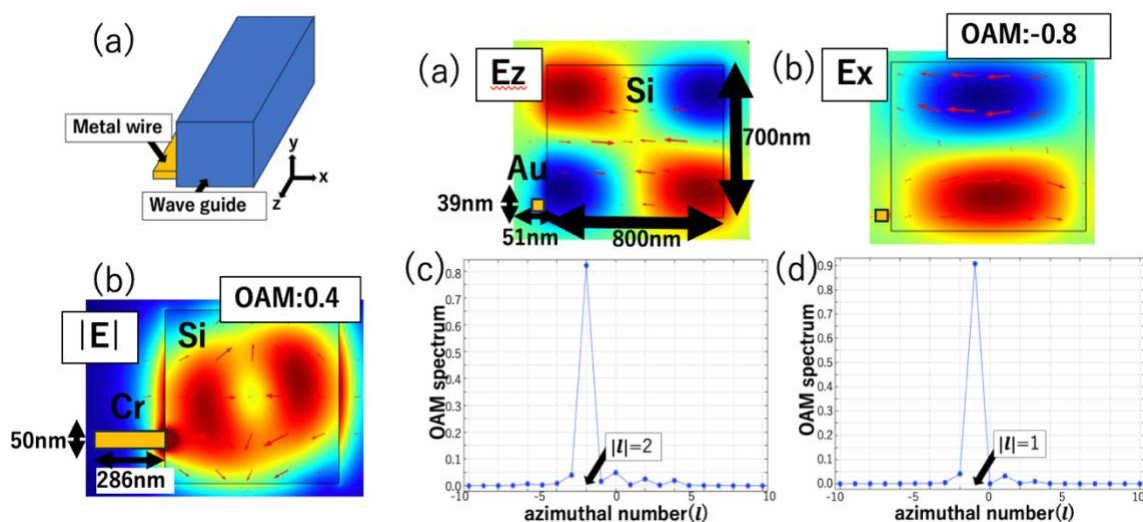


fig.1(a)Simple figure

(b)Electric field($|E|$)

fig.2 (a)Electric field(Ez)

(b) Electric field(Ex)

(c) OAM spectrum(Ez) (d) OAM spectrum(Ex)

[1]Yu, N *et al.*, *Science***334**,333-337(2011).[2] Cai, X *et al.*, *Science***338**,363-366(2012). [3]Takiguchi, *ACS Photonics* 2024, 11, 2, 789-794.[4] Kuruma, R.,*応物春* 23a-11E-1~9 (2024)

イットリウム鉄ガーネットを母材とした H1 型フォトリック結晶ナノ共振器の作製

Fabrication of H1-type photonic crystal nanocavities based on yttrium iron garnet

慶應理工¹, 東大先端研² ○(M2) 谷口公太¹, 北井達也¹, 山家 健¹, 高 思源¹, 岩本 敏², 太田 泰友¹

Keio Univ., Japan¹, RCAST, the Univ. of Tokyo, Japan²,

○Kota Taniguchi¹, Tatsuya Kitai¹, Takeru Yambe¹, Gao Siyuan¹, Satoshi Iwamoto², Yasutomo Ota¹

E-mail: kota-t10@keio.jp

はじめに イットリウム鉄ガーネット(YIG)系単結晶は、室温・光通信波長帯における最も優れた透明磁気光学材料の一つである^[1]。YIG を母材とした C_{6v} 対称性を有する H1 型フォトリック結晶ナノ共振器 (PCNs) を形成し、その二重縮退モードを活用することで極小光サーキュレータ^[2]などの非相反ナノ光素子の実現できると期待される。しかし、YIG は難加工性であり PCN などの高度な微小光構造^[3]の作製は極めて難しいことが知られている。前回我々は、 SiO_2 上に準備した単結晶 YIG 薄膜に対して微細加工を行い、L5 型 YIG-PCN 構造の作製に成功し報告した^[4]。今回、同技術を発展させ、空孔半径変調を導入した H1 型 PCNs の作製に成功したので報告する。

結果 本研究で検討したデバイス構造を図 1(a)に示す。本構造は点欠陥を有する三角格子円孔フォトリック結晶を基礎とした H1 型 PCNs である。 C_{6v} 対称性を保持しながら欠陥部分に近接した空孔の半径と位置の最適化を行った。3次元有限差分時間領域法を用いた数値解析の結果、屈折率 $n_{\text{Bi:YIG}}=2.37$ 、格子定数 $a=598$ nm, 空孔半径 $r_0=0.29a$, スラブ厚 $t=300$ nm, $s_1=0.21a$, $r_1=0.23a$, $s_2=0.05a$, のとき、波長 1550 nm の双極子モードで $Q=2.3 \times 10^4$, モード体積 $V=0.87(\lambda/n)^3$ が得られた。次に、当研

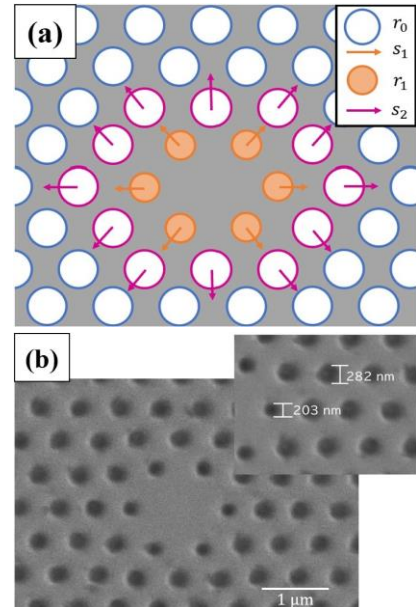


Fig.1 (a) Cavity design and parameters. The arrows indicate the directions of the shifts. (b) Scanning electron microscope image of the YIG based H1-type PCNs.

究室が独自に開発した SiO_2 上に形成した単結晶 YIG 薄膜に対して電子線リソグラフィとドライエッチングを行い、設計した共振器構造の作製を行った。その後、フッ酸を用いたウェットエッチングによって SiO_2 層を除去し、エアブリッジ型 PCN を作製した。作製した共振器の走査電子顕微鏡像を図 1(b)に示す。三角格子円孔フォトリック結晶（格子定数 590 nm、円孔直径 282 nm）を基礎とした H1 型共振器が形成できている。また、空孔半径の変調も確認できる。同構造は光通信波長帯において高 Q 値光共振を示すと期待される。その他の実験結果の詳細や光学評価の結果については当日報告する。

参考文献 [1] K. Srinivasan et al., Opt. Mater. Express, 12, 697 (2022). [2] Z. Wang et al., Opt. Lett, 30, 15 (2005). [3] D. O. Ignatyeva et al., Nat. Commun., 11, 5487 (2020). [4] 谷口公太, 太田泰友他, 第 71 応用物理学会春季学術講演会 24p-11F-12 (2024). **謝辞** 実験に協力、助言頂いた石田悟己氏、大槻秀夫氏、松清秀次氏に感謝する。本研究の一部は JST FOREST (JPMJFR213F), JST CREST (JPMJCR19T1)、科研費(22H00298, 22H01994, 22K18989)、日本板硝子財団、池谷科学技術振興財団の支援の下遂行された。

イットリウム鉄ガーネットに基づく 磁気光学マイクロディスク共振器の作製と評価

Fabrication and characterization of magneto-optical microdisk resonators
based on yttrium iron garnet

慶應理工¹, 東大先端研² ○山家 健¹, 北井 達也¹, 谷口 公太¹, 高 思源¹,
今村 陸¹, 熊崎 基¹, 藤井 瞬¹, 田邊 孝純¹, 岩本 敏², 太田 泰友¹

Keio Univ., Japan¹, RCAST, the Univ. of Tokyo, Japan²,

○Takeru Yambe¹, Tatsuya Kitai¹, Kota Taniguchi¹, Siyuan Gao¹, Riku Imamura¹, Hajime Kumazaki¹,
Shun Fujii¹, Takasumi Tanabe¹, Satoshi Iwamoto², Yasutomo Ota¹

E-mail: yantake-pen2@keio.jp, ota@appi.keio.ac.jp

はじめに イットリウム鉄ガーネット(YIG)系単結晶は室温・通信波長帯において高い透明性と比較的大きな磁気光学(MO)効果を示す稀有な光学材料^[1]である. これまで YIG を用いた微小球光共振器^[2]や Fabry-Pérot 型光共振器^[3]が作製され MO 効果増大が報告されてきた. しかし、前者は mm スケールでサイズが大きいという課題がある. 後者は屈折率差が小さい GGG 基板上で作製されている上高 Q 値化には至っていない. 今回我々は、SiO₂ 上に YIG 単結晶薄膜を形成し、これを微細加工することで高 Q 値 YIG マイクロディスク光共振器の作製に成功したので報告する.

実験結果 YIG マイクロディスク共振器の作製プロセスを図 1(a)に示す. まず熱酸化膜付きシリコン基板と YIG 単結晶基板を常温プラズマ親水化接合によって融着した. その後複数の研磨盤を用いた機械研磨と化学機械研磨によって YIG 層を 300 nm 程度まで薄膜化した. 次に電子線リソグラフィとドライエッチング^[4]によって YIG を加工した. さらに HF 処理を行いエッジ部分を中空化した YIG マイクロディスク共振器を作製した. 加工後の SEM 像を図 1(b)に示す. ディスクの直径は約 104 μm、側壁角度はおおよそ 70°だった. 作製素子に対し Dimpled tapered fiber を用いた透過率測定により光学評価を行ったところ図 1(c)に示す光共振ピークを観測した. 得られた波形から Q 値は 2.1×10^4 と見積もられた. その他詳細は当日報告する.

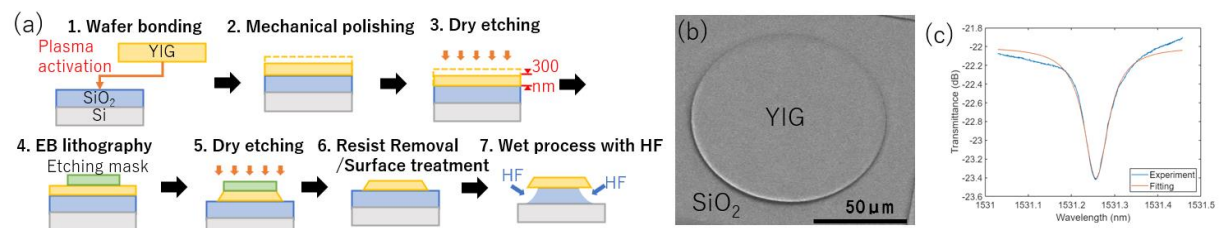


Fig.1 (a) Fabrication process of a YIG microdisk resonator. (b) SEM image of a fabricated YIG microdisk. (c) Measured cavity resonance peak exhibiting $Q \approx 2.1 \times 10^4$.

参考文献 [1] K. Srinivasan *et al.*, Opt. Mater. Express, **12**, 697 (2022). [2] X. Zhang *et al.*, Phys. Rev. Lett., **117**, 123605 (2016). [3] H. Qin *et al.*, Nat. Commun., **12**, 2293 (2021). [4] 北井他, 応用物理学会秋, [22a-A401-1] **謝辞** 実験に協力、助言頂いた石田悟己氏、大槻秀夫氏、松清秀次氏に感謝する. 本研究の一部は JST FOREST (JPMJFR213F), JST CREST (JPMJCR19T1)、科研費(22H00298, 22H01994, 22K18989)、日本板硝子財団、池谷科学技術振興財団の支援の下遂行された.

Optical Rectenna Based on a Hollow Resonator for Mid-Infrared Energy Harvesting

東北大院工, [○]Liu Zhen、岡祐志、清水信、湯上浩雄

Tohoku Univ., [○]Zhen Liu, Yuji Oka, Makoto Shimizu, Hiroo Yugami

E-mail: liu.zhen.a3@tohoku.ac.jp

Rectenna devices, short for rectifying antennas, incorporate an antenna-coupled rectifying diode that absorbs incident light and directly converts it into direct current (DC) by rectifying electromagnetic waves at optical frequencies. Their broad wavelength adaptability makes them promise for efficient energy conversion in solar energy, waste-heat utilization, and industry thermal radiation. Recently, optical rectennas have been extensively studied to achieve effective photoelectric conversion for solar and thermal radiation to design the practical devices. The metal-insulator-metal (MIM) diode which based on the quantum tunneling transport mechanism of electron is a strong candidate to realize such high frequency rectification.

Several strategies are studied to harvest the light energy using the designed optical antenna coupled with MIM diodes. For instance, a bow-tie antenna was proposed to form the plasmonic nanogap which coupled with the MIM diode for middle infrared radiation rectification [1]. A stripe antenna coupled with the longitudinal optical phonon mode was studied to overcome the challenge that precise alignment during the fabrication which enable to form a highly reliable tunnel layer [2]. However, these designs require the unique intrinsic properties of materials or fabrication technique. resulting in limitation of operation wavelength. Our group reported an optical rectenna device design based on a hollow resonator which coupled with a layered MIM tunnel diode [3]. This device demonstrated the controllability of photoelectric conversion within the visible optical range. Due to the flexible adaptability of the hollow resonator to various wavelengths, it provides a strategy for energy harvesting for middle infrared (MIR) radiation from low-temperature thermal sources.

In this study, an optical rectenna with a depth of several micrometers hollow resonators was studied. The heavily doped silicon with high reflectivity in MIR was used for forming deep depth easily and couple with MIM diodes to enable energy harvesting in infrared thermal radiation. The microscopy images of the proposed optical rectenna and SEM images of hollow resonator are shown in Fig. 1(a) and (b). The continuous wave quantum cascade laser (QCL) with wavelength 6.13 μm was used to evaluate the power generation property. The short-circuit current and open-circuit voltage were measured using a source measuring unit, and the results of the fabricated rectenna with slit hollow resonators are shown in Fig. 1(c). A clear power generation characteristic with a short-circuit current of $I_{sc}=4.8 \text{ A/m}^2$ and an open-circuit voltage of $V_{oc}=3.7 \mu\text{V}$ was observed under 6.13 μm light illumination, which demonstrated the effectiveness of the hollow resonators to realize the energy harvesting from MIR light.

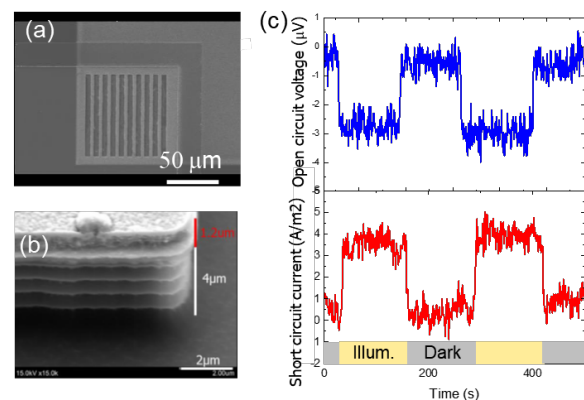


Fig. 1. (a),(b) The structural features of proposed optical rectenna. (b) Power generation test with QCL at 6.13 μm .

References [1] F. Yasilkoy et al., *Microelectron. Eng.*, 98 (2012). [2] P. S. Davids et al., *Science.*, 367 (2020). [3] D. Matsuura et al., *Appl. Phys. Express*, 15 (2022).

光ヘテロダイン光熱変位法によるマイクロピラーとホールの熱物性評価

Evaluation of Thermophysical Properties of Micro Pillars and Holes

by Laser Heterodyne Photothermal Displacement Method

宮崎大工¹, 物材機構², [○]岩切 孝洋¹, 原田 知季¹, 石井 智², 碓 哲雄¹, 福山 敦彦¹Univ. of Miyazaki¹, NIMS², Takahiro Iwakiri^{○1}, Tomoki Harada¹, Satoshi Ishii²,Tetsuo Ikari¹, Atsuhiko Fukuyama¹

E-mail: hk19006@student.miyazaki-u.ac.jp

1. はじめに

光熱変換効率の高い微細構造を作製することは、太陽熱蒸留や光学的 PCR 検査に大きく貢献する。光熱変換による温度上昇はその物質の光吸収率と熱伝導率に依存する。これまでの研究では微細構造を用いて光を最大限吸収することが注目されていたが、光熱変換効率を高めるには、小さい熱伝導率を実現することも重要である。本研究では、光吸収率と熱伝導率を同時に制御しうる微細構造を作製し^[1]、光ヘテロダイン光熱変位(LH-PD)法^[2]を用いてその構造が光熱変換に与える影響を明らかにする。

2. 試料詳細と実験方法

本研究では、Si 基板上にマイクロメートルオーダーの穴(hole array: 以下、hole)や柱(pillar array: 以下、pillar)を持つ微細構造を、周期や高さを変化させて作製した。その形状を図1の挿入図に示す。今回は、周期が 1.0 μm 、高さが 3.6 μm の試料の熱物性を評価した。

LH-PD 法は、励起光照射によって生じたキャリアの非発光再結合による試料表面の熱膨張変位をヘテロダイン干渉計で測定する手法である。本手法では励起光と検出光の照射位置を個別に設定できるため、熱物性の面内変化を評価できる。更に LH-PD 法では熱膨張変位の時間変化を測定可能であり、信号発生に含まれる光吸収係数や熱拡散率を調べることができる。励起光を pillar や hole の中心に、検出光は

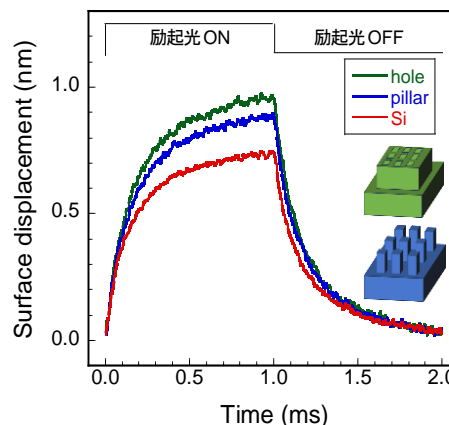


Fig. 1 Time variation of the surface displacement for hole, pillar and Si.

それらが形成された領域のすぐ外側にある Si 基板に照射した。測定は室温で行った。

3. 実験結果と考察

Fig.1 に hole と pillar と Si 基板の変位量の時間変化を示す。Si 基板より pillar や hole の方が、変位量の最大値が大きいことから hole や pillar により光を熱に変換する効率が高いことがわかる。また、hole よりも pillar の方が変位量の最大値は小さくなった。これは hole より pillar の方が実効的熱伝導率が小さいため、下部の Si 基板が加熱されにくくなったと考えられる。さらに、pillar や hole の高さを変化させた実験では、高さが約 24 倍になると、変位量の最大値が約 1.15 倍大きくなる結果となった。これは、高さが高いほど pillar や hole での光熱変換効率が高くなったと考えられ、今後定量的な議論を行う。

[1] S. Ishii *et al.*, Applied Materials Today. **32**, 101824 (2023).[2] T. Harada *et al.*, J. Appl. Phys. **131**,195701 (2022).

銀ナノ粒子電極を装着した熱電変換素子の特性評価

Performance of Thermoelectric Device loaded with Ag Nanoparticle Electrode

東京農工大, °(M2)爲廣英純, 久保若奈

Tokyo Univ. of Agri. Technol. (TUAT), (M2)°Hidezumi Tamehiro, Wakana Kubo

E-mail: w-kubo@cc.tuat.ac.jp

熱電変換は熱電素子上の温度勾配を起電力に変換するゼーベック効果に基づく。そのため、素子上の温度勾配が消失する均一な熱輻射環境下では発電しない。これに対し我々は、熱輻射を吸収するメタマテリアル (Metamaterial Absorber: MA)を用いて、従来の熱電変換素子が発電できない均一な熱輻射環境においても熱電発電するメタマテリアル熱電変換を提案、実現した^[1-3]。これまで我々はメタマテリアル熱電変換の原理検証のために、形状とサイズを統一したメタマテリアル構造を用いてきたが、本素子を実用化するにあたってはより単純なメタマテリアル構造の起用が望ましい。そこで本研究はアニール法によって形成した銀ナノ粒子 (Ag NP)を起用する着想に至った。アニール法で作製した Ag NPs は可視光領域でプラズモン吸収を持つ。今回は、Ag NPs のプラズモン共鳴波長と一致する 638 nm のレーザー光を照射した際の熱電特性を評価することで、熱電特性に対する Ag NPs の効果を議論することにした。

銅電極上にフッ化カルシウム (CaF₂)と Ag 薄膜をそれぞれ 10 nm 成膜した。ホットプレートにより 400 °C, 5 分間加熱し、Ag NPs 電極を作製した。作製した Ag NPs 電極をビスマスアンチモンテルル (Bi_{0.3}Sb_{1.7}Te₃)熱電変換素子の片側に装着した (Fig.1(a))。作製した Ag NP 電極の吸収ピークは波長 666 nm で、吸収率は 73.7%であった (Fig.1(b))。また他端には銅基板上に CaF₂を 10 nm のみ成膜した比較電極を作製し、装着した。なお波長 666 nm における比較電極の吸収率は 19%であった。波長 638 nm, 強度 0.12 W/mm²の単色光を電極に照射した際に得た出力電圧を Fig.1 (c)に示す。Ag NPs 電極, または比較電極に光照射した際の出力電圧はそれぞれ 37.5 uV と 21.7 uV で、Ag NPs 電極は比較電極より 1.7 倍高い出力電圧を示した。この結果は、Ag NPs のプラズモン励起により生じたプラズモン局所熱が熱電変換素子一端に伝搬し、熱電変換特性が向上したことを示す。単色光照射下における Ag NPs プラズモン励起によって熱電特性の向上が可能であることを確認した。

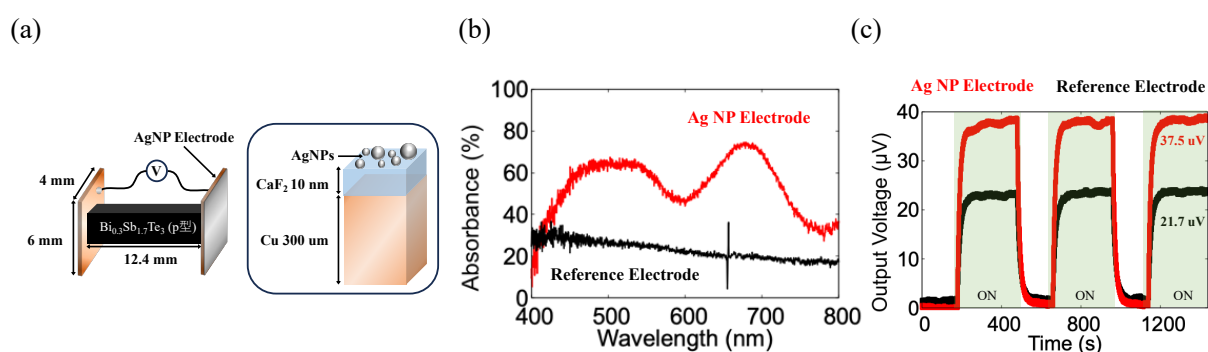


Fig. 1 (a) Schematic of thermoelectric device loaded with the Ag NPs electrode and an enlarged cross-sectional image of the Ag NP electrode. (b) Measured absorption spectra of the Ag NPs (red) and control (black) electrodes. (c) Time dependence of the output voltages generated on the thermoelectric device with/without Ag NP electrode.

[1] S. Katsumata, T. Tanaka, and W. Kubo, Optics Express, 29, 16396 (2021).

[2] N. Kawamura, T. Tanaka, and W. Kubo, ACS Photonics, 11, 1331 (2024).

[3] R. Nakayama, S. Saito, T. Tanaka, and W. Kubo, Nanophotonics, 13, 1361 (2024).

謝辞 Bi_{0.3}Sb_{1.7}Te₃ 素子をご提供いただきました (株) 豊島製作所に感謝申し上げます。

磁気光学薄膜上における BIC モードスローライト導波路の検討 II

Investigation of BIC slow light waveguides on a magneto-optical thin film II

慶應理工¹, 東工大², 東大先端研³

°(M2)谷村優太¹, 石井佑樹¹, 上村高広², 岩本敏³, 太田泰友¹

¹Keio Univ., ²Tokyo Tech., ³RCAST, the Univ. of Tokyo,

°Y. Tanimura¹, Y. Ishii¹, T. Uemura², S. Iwamoto³, and Y. Ota¹

E-mail: y.t.tanimura@keio.jp, ota@appi.keio.ac.jp

はじめに イットリウム鉄ガーネット(YIG)系単結晶は、光通信波長帯における優れた透明磁気光学材料である。しかし、その高品質な微細加工は難しくナノフォトニクスへの応用はこれまで限定的であった。近年、同じく難加工性材料であるニオブ酸リチウムの薄膜上に電子線レジストによる細線構造を装荷し、BIC(Bound states In the Continuum)状態を活用した低損失な TM モード光導波路が報告された[1]。しかし、同構造を基礎としたより高度な光学構造は検討されてこなかった。前回我々は、YIG 薄膜上に形成した BIC モード導波路に周期円孔に基づく 1 次元フォトニック結晶を導入した構造を検討し、スローライト状態形成に必要なバンドギャップ ($\Delta f = 0.88$ THz) が得られることを見出した[2]。一方、ギャップ近傍の伝搬損失は 8 dB/cm 程度と大きかった。今回、より低損失な BIC スローライト導波路構造を電磁界計算により見出したので報告する。

結果 検討構造を Fig. 1(a)に示す。SiO₂ 上に設置された YIG 薄膜 (膜厚 300 nm) の上に余弦波変調された電子線レジストが装荷されている。余弦波変調の格子定数を $a = 0.45$ μm 、振幅を Δw とし、レジスト幅 $w = 1.62$ μm の導波路構造に対して X 点における固有周波数解析を行った。 $\Delta w/w$ と伝搬損失及びバンドギャップの大きさ Δf の関係をそれぞれ計算によって求めた (Fig. 1(b), (c))。 $\Delta w/w = 0.45$ において小さな伝搬損失 0.45 dB/cm と大きなバンドギャップ $\Delta f = 2.2$ THz が得られた。このとき、TE-TM 変換の抑制と強い空間光閉じ込めが見られ (Fig. 1(d))、BIC 状態の形成が確認できる。スローライト帯域や群速度と導波損失の関係など、計算結果の詳細については当日報告する。

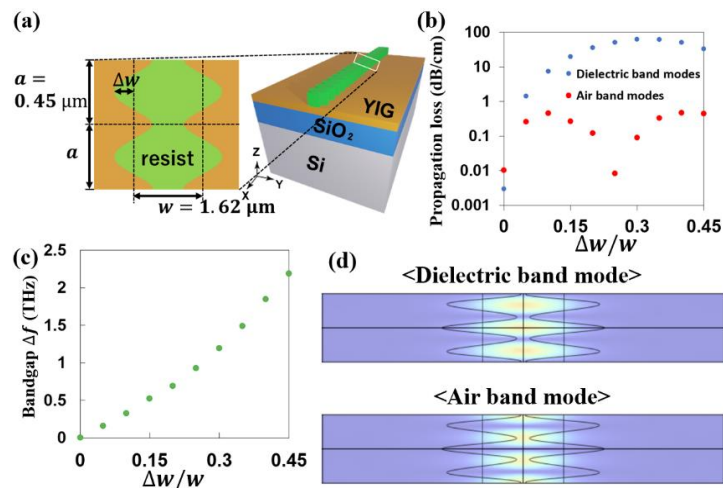


Figure.1 (a) Schematic of the investigated BIC slow light waveguide. (b) Computed propagation losses and (c) bandgaps as a function of $\Delta w/w$. (d) Field profiles of the guided modes designed with $\Delta w/w = 0.45$.

参考文献 [1] Z. Yu *et al.*, *Optica* **6**, 1342 (2019). [2] 谷村他, 応物秋季講演会, 23p-A309-8 (2023).

謝辞 ご助言頂いた東北大小澤知己教授に感謝する。本研究は JST 創発的研究支援事業 JPMJFR213F により遂行された。

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.5】 3.10 フォトニック構造・現象、3.12 半導体光デバイスのコードシェア

[18a-A34-1~9] CS.5 3.10 フォトニック構造・現象、3.12 半導体光デバイスのコードシェア

[18a-A34-1]

凸型端面構造を有する円形欠陥2次元フォトニック結晶レーザの作製と室温連続発振

○左 如氷¹、足立 雄紀¹、工藤 悠人¹、葉 漢嶠¹、八木 哲哉¹、森藤 正人¹、梶井 博武¹、丸田 章博¹、近藤 正彦¹ (1.阪大院工)

[18a-A34-2]

フォトニック結晶レーザーの光注入同期動作の実証

○井上 卓也¹、森田 遼平^{1,2}、吉田 昌宏¹、石崎 賢司¹、De Zoysa Menaka¹、野田 進¹ (1.京大院工、2.東北大院工)

[18a-A34-3]

InP系フォトニック結晶レーザーの光出力のスケラビリティの検討

○伊藤 友樹^{1,2}、青木 健志^{1,2}、藤井 康祐^{1,2}、田中 礼¹、小笠原 誠¹、澤田 祐甫¹、町長 賢一¹、木村 峻¹、吉永 弘幸^{1,2}、藤原 直樹^{1,2}、八木 英樹¹、柳沢 昌輝¹、吉田 昌宏²、井上 卓也²、メーナカ デゾイサ²、石崎 賢司²、野田 進² (1.住友電工、2.京大工)

[18a-A34-4]

First emission of active nano-pixel waveguide using InGaAsP-MQW membrane

○(M2)ZHESHENG LEI¹, Islam Mohammad Shafiqul¹, Haisong Jing¹, Ryota kuwahata¹, Eisaku Kato², Kiichi Hamamoto¹ (1.I-Eggs, Kyushu Univ., 2.The Univ. of Tokyo.)

[18a-A34-5]

親水性直接貼付InP/Si基板上GaInAsP SCH-MQWレーザの発振特性

○(DC)趙 亮¹、矢田 涼介¹、ZHANG JUNYU¹、下村 和彦¹ (1.上智大学)

[18a-A34-6]

異種材料集積波長可変レーザのしきい値電流における1.55μm帯QD-RSOAの素子長依存性の検討

○(M2)松木 太翼¹、松本 敦²、中島 慎也²、梅沢 俊匡²、Cheng Chih-Hsien²、赤羽 浩一²、山本 直克²、川西 哲也¹ (1.早大理工、2.情通機構)

[18a-A34-7]

化合物エッチングナノワイヤ集積Siフォトニック結晶共振器のレーザ発振

○滝口 雅人^{1,2}、藤井 拓郎^{1,3}、角倉 久史^{1,2}、新家 昭彦^{1,2}、松尾 慎治^{1,3}、納富 雅也^{1,2,4} (1.NTT NPC、2.NTT 物性研、3.NTT 先デ研、4.東工大理)

[18a-A34-8]

分割領域フォトニック結晶レーザーの周波数変調度増大の検討

○森田 遼平^{1,2}、井上 卓也¹、仲野 秀栄¹、De Zoysa Menaka¹、石崎 賢司¹、石村 昇太³、高橋 英憲³、釣谷 剛宏³、鈴木 正敏⁴、野田 進¹ (1.京大院工、2.東北大工、3.KDDI総合研究所、4.早大理工)

[18a-A34-9]

大域的バンド端周波数分布と分割電極導入による短パルス・高出力フォトニック結晶レーザーの高速変調動作の提案

○(M1)柴田 悠樹¹、井上 卓也¹、森田 遼平^{1,2}、野田 進¹ (1.京大院工、2.東北大院工)

凸型端面構造を有する円形欠陥

2次元フォトリック結晶レーザの作製と室温連続発振

Fabrication and room-temperature continuous-wave lasing of circular defect in two-dimensional photonic crystal laser with convex edge structure

阪大院工,[○]左 如氷, 足立 雄紀, 工藤 悠人, 葉 漢嶠, 八木 哲哉,

森藤 正人, 梶井 博武, 丸田 章博, 近藤 正彦

Osaka Univ., [○]Rubing Zuo, Yuki Adachi, Yuto Kudo, Hanqiao Ye, Tetsuya Yagi,

Masato Morifuji, Hirotake Kajii, Akihiro Maruta and Masahiko Kondow

E-mail: zuo@e3.eei.eng.osaka-u.ac.jp

[序] チップ内の光通信を実現するために、我々は円形欠陥を有する電流注入型 2 次元フォトリック結晶 (CirD) レーザを提案し、研究と開発を行っている[1]。直交格子導波路 (OLW) は 20 nm の帯域幅を持ち、クロストーク干渉の少ない波長多重通信が可能である。しかし、試料を劈開して出射光を測定すると、劈開位置によって出射光強度が変化する。シミュレーションにより、出力端面に凸型端面構造を設置することで、この影響を排除でき、より高い光出力が得られる可能性が示された[2]。本研究では、この構造の作製技術を開発・確立し、実際に試料を作製し光学測定を行った。その結果、この構造を用いた室温連続レーザ発振を初めて観測した。

[実験方法と結果] GaAs コンタクト層、InAs QD 層を含む GaAs コア層、コア層を挟む上下 AlGaAs クラッド層の厚さは、それぞれ 180 nm、220 nm、550 nm である。作製手順は以下に示す。①電子線 (EB) リソグラフィーを用いて、基板上にフォトリック結晶パターンと凸型端面パターンを描画し、ドライエッチングによってパターンをエッチングした。三角格子の格子定数、空孔半径、端面の位置、半円形ポートの半径は先行研究の計算によって得られた最適値を採用した[2]。②H₂O/N₂ 蒸気中、395 °C で 45 分間、AlGaAs を AlGaO_x に酸化した。③凸型端面構造付近のコンタクト層を除去するために、劈開許容範囲である幅 10 μm の矩形パターンの重ね EB リソグラフィーとドライエッチングを行った。④BHF ウェットエッチングにより、凸型端面構造付近の AlGaAs/AlGaO_x クラッド層を除去し、Air クラッド層を形成した。⑤凸型部分が存在する矩形パターン内で試料を劈開した。劈開後の試料の上面 SEM 像を図 1 に示す。この手順で作製した試料の出力は劈開位置による影響がない。785 nm のレーザ光をポンプ光として光学測定を行った。出力パワーと入力パワーの関係を図 2 に示す。閾値パワーは 50 μW であり、通常の劈開端面を持つレーザ化した試料で得られた結果に近い[3]。入力パワー 210 μW のスペクトルを図 3 に示す。ピーク波長と半値幅はそれぞれ 1296.1 nm、0.09 nm であり、CirD レーザとして妥当な値である。これらの結果は、より高い出力を得るための端面形状の改良など、今後の研究に貢献するものと考えている。

[参考文献] [1] Y. Xiong, et al., *Photonics*, 6, 54 (2019)

[2] Y. Adachi, et al., *physica status solidi (a)*, 2300579 (2024)

[3] Y. Adachi, et al., *IEICE Electronics Express*, 20, 20230054 (2023)

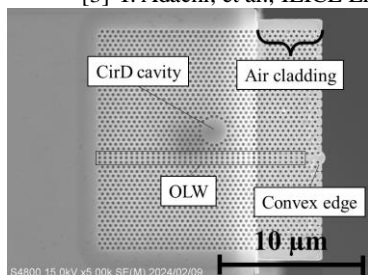


Fig. 1 Top-view SEM image of fabricated sample

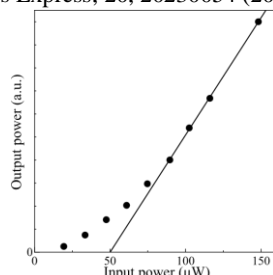


Fig. 2 Relationship between input power and output power

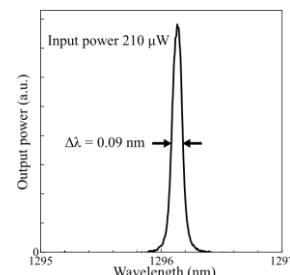


Fig. 3 Spectrum of the sample. Input power is 210 μW.

フォトリック結晶レーザーの光注入同期動作の実証

Demonstration of injection locking of photonic-crystal lasers

京大院工¹, 東北大院工², [○]T. Inoue¹, 森田遼平^{1,2}, 吉田昌宏¹, 石崎賢司¹, De Zoysa Menaka¹, 野田進¹

Kyoto Univ.¹, Tohoku Univ.², [○]T. Inoue¹, R. Morita^{1,2}, M. Yoshida¹, K. Ishizaki¹, M. De Zoysa¹, S. Noda¹

E-mail: t_inoue@qoe.kuee.kyoto-u.ac.jp, snoda@kuee.kyoto-u.ac.jp

【序】 我々は、フォトリック結晶レーザー(PCSEL)の高出力・高輝度化の実現に向けて、二重格子フォトリック結晶¹⁾の格子点設計の深化・最適化を進めており、これまでに、超大面积($\geq 3\text{mm}\Phi$)単一モード発振を実現するための設計指針の確立とともに²⁾, $3\text{mm}\Phi$ PCSEL を実際に作製し、 $1\text{GW}/\text{cm}^2/\text{sr}$ という大型レーザーにも匹敵する高輝度連続動作に成功している³⁾。また、前回、複数の PCSEL のコヒーレント結合動作の実現に向けて、PCSEL に外部光を注入した際の過渡応答解析を行い、出力光の $1/1000$ 程度のパワーの光注入による位相同期動作が実現可能であることを報告した⁴⁾。今回、実験的にも、光注入同期動作の実証に成功したので報告する。

【実験結果】 PCSEL の光注入同期に用いた光学系を Fig. 1(a)に示す。直径 1mm の単一モード二重格子 PCSEL (共振波長 λ_{pc}) に対して、面垂直方向から同じ偏光をもつ波長可変レーザー光 (入射波長 λ_{in} 、入射直径約 1mm 、入射パワー $P_{\text{in}} \sim 0.5\text{mW}$) をシード光として入射した。また、PCSEL の出射光を Fabry-Perot 共振器 (FSR 10GHz 、波長分解能 $\Delta\lambda = 0.2\text{pm}$) に結合させ、その透過波長を走査することで、PCSEL の発振スペクトルの高分解測定を行った。まず、PCSEL の出力を $P_{\text{out}} = 0.33\text{W}$ に設定し、入射波長を約 1pm 刻みで変化させた際に得られた発振スペクトルを Fig. 1(b)に示す。入射波長が共振波長から十分離れている場合[領域(I)および(V)]には、注入電流揺らぎ等に起因する若干の波長変化を除いて、概ね元の共振波長での独立した発振が見られる。一方、入射波長が共振波長に近づいた場合 [領域(II)および(IV)]には、入射光が発振モードと相互作用するようになり、スペクトルに複数の発振ピークが現れた。さらに、入射波長と共振波長の差が約 1pm 以下になると[領域(III)]、入射光に一致した波長での単一モード発振が得られた。続いて、上記の領域(III)において、PCSEL の出力を $P_{\text{out}} = 0.62\text{W}$ に増加させ、バランスドディテクタを用いて PCSEL の出力光とシード光のヘテロダイン干渉波形 ($40\mu\text{s}$ 間) を測定した。得られた干渉波形を、光入射を行わない場合の結果と合わせて Fig. 1(c)に示す。光を入射しない場合 (灰線) は、PCSEL の注入電流や光源温度の時間的な揺らぎに起因して、ビート周波数にも $\pm 10\text{MHz}$ 程度の変動が生じたのに対し、光入射時 (赤線) には、PCSEL の発振波長と入射波長が一致し、一定の位相差で干渉が生じていることがわかる。詳細は当日報告する。

【謝辞】 本研究の一部は科研費 (24H00430, 22H04915) および BRIDGE のもとで行われた。**【文献】**

1) Yoshida *et al.*, Nat. Mater. **18**, 121 (2019). 2) Inoue *et al.*, Nat. Commun. **13**, 3262 (2022). 3) Yoshida *et al.*, Nature **618**, 727 (2023). 4) 井上他, 2024 年春季応物 23a-11E-8.

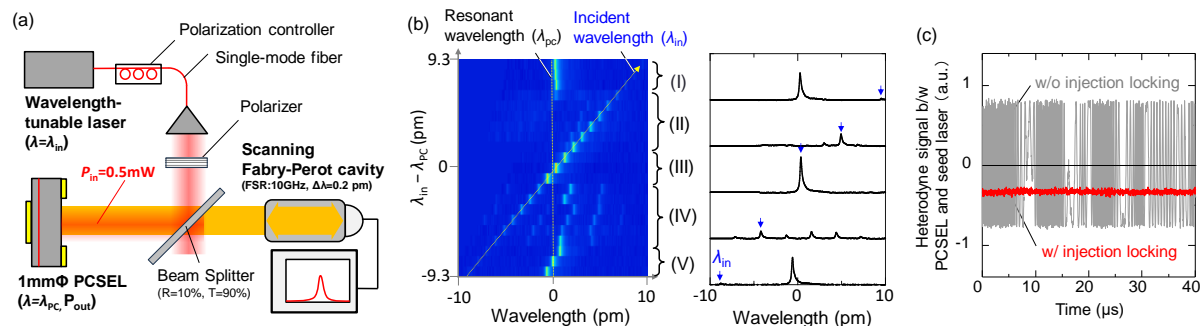


Fig. 1. (a) Experimental setup for injection locking of PCSELs. (b) Measured lasing spectra when $\lambda_{\text{in}} - \lambda_{\text{pc}}$ is varied. (c) Heterodyne beat note signals between the PCSEL and seed laser with and without injection locking.

InP 系フォトニック結晶レーザーの光出力のスケラビリティの検討

Investigation of power scalability in InP-based photonic-crystal surface-emitting lasers

住友電工¹, 京大院工², [○]伊藤 友樹^{1,2}, 青木 健志^{1,2}, 藤井 康祐^{1,2}, 田中 礼¹, 小笠原 誠¹,
澤田 祐甫¹, 町長 賢一¹, 木村 峻¹, 吉永 弘幸^{1,2}, 藤原 直樹^{1,2}, 八木 英樹¹, 柳沢 昌輝¹,
吉田 昌宏², 井上 卓也², メーナカデゾイサ², 石崎 賢司², 野田 進²

Sumitomo Electric Industries¹, Kyoto Univ.², [○]Y. Itoh^{1,2}, T. Aoki^{1,2}, K. Fujii^{1,2}, R. Tanaka¹, M. Ogasawara¹,
Y. Sawada¹, K. Machinaga¹, S. Kimura¹, H. Yoshinaga^{1,2}, N. Fujiwara^{1,2}, H. Yagi¹, M. Yanagisawa¹,
M. Yoshida², T. Inoue², M. D. Zoysa², K. Ishizaki² and S. Noda²

E-mail: itoh-yuhki@sei.co.jp, snoda@kuee.kyoto-u.ac.jp

【はじめに】フォトニック結晶レーザー (PCSEL) は、活性層近傍に設けた 2 次元フォトニック結晶 (PC) の特異点 (Γ 点) における 2 次元共振作用を利用した面発光型の半導体レーザーであり、原理的に、高出力・高ビーム品質なレーザー発振が可能である^[1]。我々は、この特徴を活かした通信およびセンシング用光源として、InP 材料系の PCSEL を検討している^[2]。これまでに、1.3 ~ 1.5 μm 帯の InP 系 PCSEL において、二重格子 PC と金属ミラー電極の採用により室温 CW 駆動における高出力 (>330 mW)かつ単一モード動作を実証してきた^[2,3]。今回、PCSEL の特徴のひとつである出力のスケラビリティについて、1.5 μm 帯 InP 系 PCSEL で検討した。

【構造と特性】我々の PCSEL は、ドライエッチングにより PC を形成した後に、その上部に活性層を再成長することで、活性層へのエッチングダメージを回避している。また、100 nm 以下の InP スペーサー層を PC 上に再成長し、空孔深さを維持した状態で平坦化を行うことにより高アスペクト比(>5)の深い空孔を活性層近傍に形成できる。その結果、活性層と PC 層内の光閉じ込めを高めることが可能となっている。PC には楕円/円の二重格子 PC を採用し、垂直方向の発光効率を高めるとともに、出射面に対し反対方向へ放射される光を、出射面へ戻すための金属ミラー電極を導入している。今回、p 電極直径(L) 100 ~ 300 μm のデバイスを作製した。複数の異なるバンドの特異点での多モード発振や、同じバンドにおける高次モード発振の抑制のため、各デバイスサイズに対して、PC 構造を最適化し、光結合係数と放射係数を調整した。作製した PCSEL の 25°C、CW 駆動時の電流-光出力特性を Fig. 1 に、デバイス面積(S)としきい値電流 (I_{th})・最大光出力 (P_{max}) の関係を Fig. 2 に示す。すべてのデバイスサイズで発振が得られ、デバイス面積に対して、しきい値電流と最大光出力が線形に増加した。 $L = 300 \mu\text{m}$ のしきい値電流は 490 mA、光出力は 511 mW であった。また、Fig. 1 の図中に示すように、0.58°の狭小な円形ビームを観測した ($L = 300 \mu\text{m}$)。各デバイスの最大出力時の光スペクトルを Fig. 3 に示す。すべてのデバイスで安定的な単一モード発振が得られており、60 dB 以上の高い副モード抑圧比を観測した。

【謝辞】本研究の一部は、内閣府 SIP プログラム・BRIDGE プログラム、科研費(22H04915)の支援を受けた。

【参考文献】 [1] S. Noda et al., Adv. Opt. Photonics 15 (2023) 977. [2] Y. Itoh et al., Optics Express 32 (2024) 12520.

[3] T. Aoki et al., Appl. Phys. Express 17 (2024) 042004.

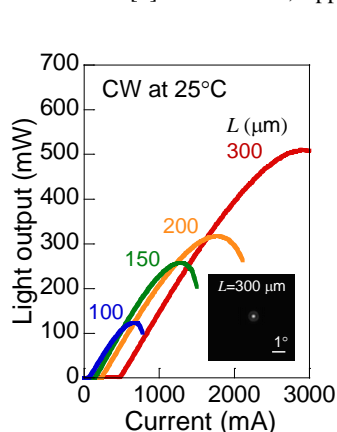


Fig. 1. Light output – current characteristics under CW condition at 25°C with far-field pattern for $L = 300 \mu\text{m}$.

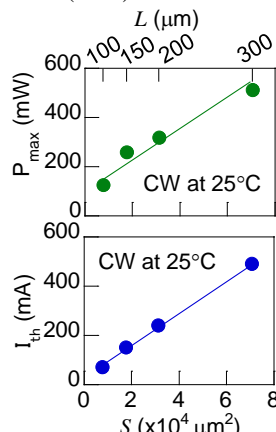


Fig. 2. Dependences of I_{th} and P_{max} on device area (S) at 25°C

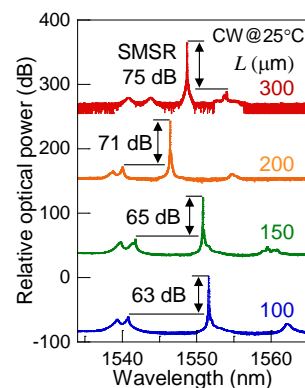


Fig. 3. Lasing spectra under CW conditions at 25°C.

First emission of active nano-pixel waveguide using InGaAsP-MQW membrane

I-Eggs, Kyushu Univ. ¹, The Univ. of Tokyo. ²,

Zhesheng Lei ¹, Islam Mohammad Shafiqul ¹, Haisong Jing ¹, Ryota kuwahata ¹, Eisaku Kato ²,
and Kiichi Hamamoto ¹ E-mail: lei.zhesheng.022@s.kyushu-u.ac.jp

1. Introduction

Direct modulation laser diode is one of the promising devices for data communication [1, 2]. One possible scheme for Tbps class modulation is to utilize photon-photon resonance (PPR) [3, 4]. We have proposed and demonstrated plural PPRs might lead to higher modulation frequency [5]; however, a restricting factor toward Tbps modulation is the cavity length because photon round-trip time limits the maximum modulation speeds. In this work, we carried fundamental research on active nano-pixel waveguide using InGaAsP-MQW membrane structure. Optically pumped active nano-pixel waveguide exhibits spontaneous light emission with Fabry-Perot resonance of 40 nm, 36 nm, and 31 nm spacing respectively that corresponds to the cavity length of approximately 20 μm , 24 μm , and 26 μm , respectively which implies plural interference paths whereas securing a few ten μm total cavity length.

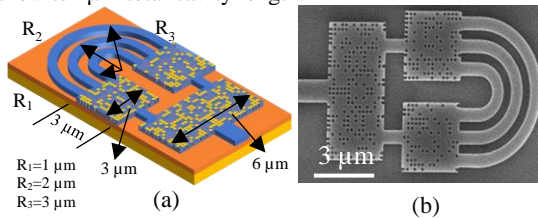


Fig. 1 Active nano-pixel waveguide. (a) Schematic, and (b) implemented device.

2. Device design and fabrication

Figure 1 shows the designed active nano-pixel waveguide. Three nano-pixel waveguide, and three bending waveguides are integrated with single input/output waveguide. 1 \times 2 nano-pixel waveguide is designed with 3 $\mu\text{m}\times$ 6 μm footprint which incorporates 190 of 180 nm \times 180 nm nano-pixels. 1 \times 3 nano-pixel waveguide is designed with 3 $\mu\text{m}\times$ 3 μm footprint which incorporates 90 sections of 180 nm \times 180 nm nano-pixel. Three different bending waveguides are designed with the path lengths 23 μm , 26 μm and 29 μm , respectively. This will realize two PPRs in case of laser. As indicated in Fig. 1, input/output is with the common single waveguide where the facet is cleaved. InGaAsP-MQW membrane structure was realized using wafer-bonding on top Si via 300 nm thick SiO₂. EB (Electron Beam) lithography and ICP (Inductively Coupled Plasma) dry-etching were used for the waveguide fabrication.

3. Results and discussion

Optical Pumping light of 1.3 μm DFB-LD was injected through the input waveguide. Thermo-electric cooler was used to control the device temperature under 25 $^{\circ}\text{C}$. For comparison, single bending waveguide integrated with 1 \times 2 nano-pixel waveguide devices were also fabricated and evaluated simultaneously. Figure 2 shows the achieved spectrum of the single bending waveguide device. The designed path lengths are: (a) 23 μm , (b) 26 μm , and (c) 29 μm , respectively. As indicated in

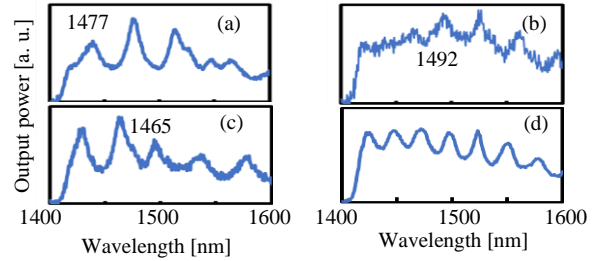


Fig. 2. Emission spectrum single bending waveguide. (a) Path length = 23 μm , (b) 26 μm , (c) 29 μm and (d) fully integrated device shown in Fig. 1.

the figure, each spectrum from (a) to (c) exhibits different Fabry-Perot resonance spacing of approximately 40 nm, 36 nm, and 31 nm that correspond to the path length of approximately 20 μm , 24 μm , and 26 μm , respectively. In addition, the peaks for (a) to (c) are slightly different each other. As indicated in the figure, the peaks are 1477 nm(a), 1492 nm(b), and 1465 nm(c), respectively. This fact leads to the possibility of interference each other, and we may design the peaks of PPR based on these results in the future. Figure 2 (d) shows the spectrum of fully integrated device (see Fig. 1). As indicated here, the resonance spacings were different and narrower than the case of Fig. 2 (a) to (c). Presently we think that the achieved spectrum was due to the plural interference of three different optical paths; however, further investigation is needed in the future.

4. Summary

We have confirmed the spontaneous light emission with Fabry-Perot resonance of approximately 40 nm, 36 nm, and 31 nm spacing that correspond to the path length of approximately 20 μm , 24 μm , and 26 μm , respectively spacing respectively in case of single bending waveguide cases. Moreover, different resonance spacing and peaks were confirmed in fully integrated device. The achieved results show the potential of plural photon-photon resonances when the device output reaches to the lasing threshold.

Acknowledgment

A part of this was supported by Kakenhi #22H01556. The authors thank Prof. Yoshiyasu Ueno (UEC) for his suggestion, and Prof. Takuo Tanemura and Prof. Yoshiaki Nakano (The Univ. Tokyo) for their technical support. A part of This work was supported by MEXT Grant Number JPMXP1223UT1113, the University of Tokyo, Japan.

References

- [1] S. Yamaoka, et al., Nat. Photon., **15**, 28 (2021)
- [2] R.I Woodward, et al., Nat. npj. Qun. Inf., **7**, 58 (2021)
- [3] K.Y. Lau, et al., J. Qun. Elect., **26**, 250 (1990)
- [4] D. D. Marcenac, et al., Photon. Tech. Lett., **6**, 1309 (1994)
- [5] X. He, et al., Photonics, **10**, 1298 (2023)

親水性直接貼付 InP/Si 基板上 GaInAsP SCH-MQW レーザの発振特性

Lasing Characteristics of GaInAsP SCH-MQW Laser Diodes Grown on Hydrophilic Bonded InP-Silicon Substrate

上智大学 理工学部, 趙亮, 矢田涼介, Zhang Junyu, 下村和彦
Sophia University, L. Zhao, R. Yada, JY. Zhang, K. Shimomura

E-mail: kshimom@sophia.ac.jp

はじめに

大規模集積回路の高速大容量通信を低消費電力で実現すべく、Si 基板上への InP 系光デバイスの集積が盛んに研究されている。これに対し、我々は、薄膜の InP と Si 基板を直接貼付法によって貼り合せ、この InP/Si 基板上に InP 系結晶の成長をすることで光デバイスの集積および作製を行う手法を提案してきた[1,2]。

今回、親水性直接貼付を用いて InP/Si 基板上に成長させた GaInAsP SCH-MQW LD 発振特性について報告する。親水性直接貼付けによるボイドパラメータとレーザのしきい値電流との関係を明らかにした。そして Si 基板上レーザにおいて、InP 基板上レーザと同等のしきい値電流値を得た。

実験方法

Si 基板上レーザの作製方法は以下の通りである。MOVPE 法で InP 基板上に GaInAs/InP/GaInAs 層を成長させ、厚さ 1-2 μm の薄膜 InP を得る。薄膜 InP と Si 基板を親水性直接貼付法で接合し、400°C、窒素雰囲気下で 1 時間アニーリングを行った。この InP-Si 基板上に MOVPE 法で図 1 に示す GaInAsP SCH-MQW レーザ構造を成長させた。接合の際に InP と Si の界面にボイドが生じ、これが光伝搬やキャリア注入に影響を与え、しきい値電流を増加させる。ボイドとレーザしきい値電流の関係を調べるため、ボイドの大きさと密度を観察した。直径と高さは Keyence VF-7510 で測定し、密度と占有面積はノマルスキ顕微鏡で測定した。それぞれウエハ面内で 15 か所測定し平均値を得た。

実験結果

図 2 はボイドの占有面積と Si 基板上レーザの発振しきい値電流密度の関係である。ボイドのパラメータの中で、ボイドの占有面積はシリコン基板上レーザのしきい値電流を低減するための重要なパラメータであることが分かった。Si

基板上の SCH-MQW LD のしきい値電流密度は、ボイド占有面積が 5%未満の場合、20°C で 1.03kA/cm² が得られた。この値は InP 基板上レーザと同等な値である。

参考文献

- [1] K. Matsumoto, J. Kishikawa, T. Nishiyama, Y. Onuki, and K. Shimomura, Jpn. J. Appl. Phys., vol.55, no.11, p.112201, 2016.
- [2] L. Zhao, G.K. Periyannayagam, R. Yada, J. Zhang, M. Kuroi, K. Shimomura, CSW2024, June 3-6, 2024, Paper No. 104650-D-2451.

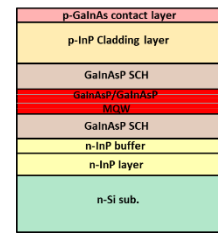


Fig. 1 Structure of SCH-MQW laser

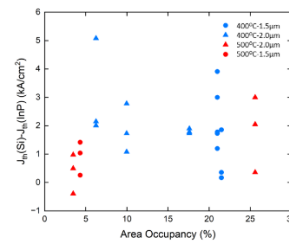


Fig. 2 Relationship between void area and threshold value

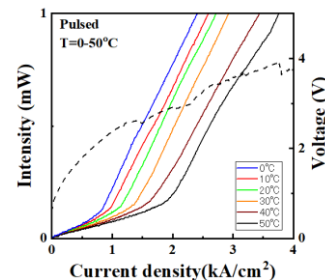


Fig.3 Laser Characteristics Curve of GaInAsP SCH-MQW LD on InP/Si Substrate

異種材料集積波長可変レーザのしきい値電流における 1.55 μm 帯 QD-RSOA の素子長依存性の検討

Investigation of device length dependence of 1.55- μm -band QD-RSOA in threshold current of SiPh-based heterogeneous tunable laser

早大理工¹, 情通機構² ○(M2) 松木 太翼¹, 松本 敦², 中島 慎也², 梅沢 俊匡², Chih-Hsien Cheng², 赤羽 浩一², 山本 直克², 川西 哲也¹

Waseda Univ.¹, NICT², °T. Matsuki¹, A. Matsumoto², S. Nakajima², T. Umezawa², C. H. Cheng², K. Akahane², N. Yamamoto², and T. Kawanishi¹

E-mail: libra-tree70@akane.waseda.jp

情報トラフィックが急増する近年, 6G に向けてテラヘルツ波などの高周波利用を可能にするため, 我々は現在 RoF (radio over fiber) [1] による高周波信号生成用の低しきい値, 高出力, 波長可変, 2 波長同時発振型送信デバイスの実現を目指している。本研究では, その前段階として, 1.55 μm 帯における量子ドット反射型半導体光増幅器 (QD-RSOA) のデバイス長依存性に関する報告がほとんどないことから, 2 重リング共振器構造の Si フォトニクス (SiPh) と QD-RSOA を用いた異種材料集積レーザのしきい値電流と, QD-RSOA のデバイス長の関係性を評価したので報告する。

作製した QD-RSOA は, InP(311)B 基板上に成長した InAlAs クラッド層, 15 対の InAs QD 層と InGaAlAs 中間層, p+型 InGaAs コンタクト層から構成され, QD は高さ 3ML, リッジ構造幅 3.5 μm で, RSOA の片端面は AR コートされている。SiPh は, マイクロヒーターの熱光学効果で共振波長を可変できる直列 2 重リング共振器を備え, 波長フィルタおよび外部レーザ共振器として機能する。実験にはデバイス長 1.5mm から 3.5mm までの QD-RSOA を用い, それらの端面を SiPh チップに結合した。

Fig.1 に示すこのレーザの I-L 特性は, QD-RSOA のデバイス長が短いほど, しきい値電流が減少することを示唆している。これはデバイス長が短くなることで, 活性領域における注入電流の均一性やエネルギー効率が向上し, 利得特性が向上したことによると考えられる。Fig.2 に示す出力スペクトルでは, マイクロヒ

ーターで発振波長を調整することで, 全てのデバイス長において約 40nm の波長可変範囲を実現している。

本研究では, QD-RSOA のデバイス長によるしきい値電流の変化や波長可変性を実験的に評価し, QD-RSOA のデバイス長依存性を観測した。デバイス長の短縮による特性向上が見込まれ, 今後は最適長を検討していく。

- [1] A. Matsumoto, et al., CLEO2017, SW4C.6 (2017).
- [2] K. Akahane, et al., Phys. Status Solidi A, Vol. 208, No. 2, pp. 425–428 (2010).

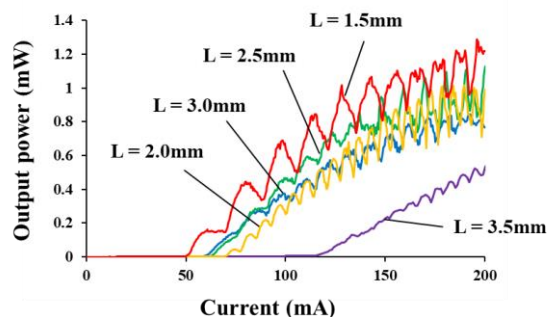


Fig.1 I-L curve of this heterogeneous QD tunable laser for each QD-RSOA device length

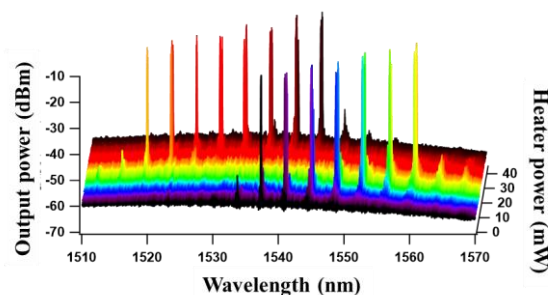


Fig.2 Output lasing characteristics when heater power of one of the ring was controlled (L = 1.5mm)

化合物エッチングナノワイヤ集積 Si フォトニック結晶共振器のレーザ発振

Lasing operation of etched nanowire integrated III-V silicon hybrid photonic crystals cavities

NTT ナノフォトニクス¹, NTT 物性研², NTT 先デ研³, 東工大理⁴

○滝口雅人^{1,2}, 藤井拓郎^{1,3}, 角倉久史^{1,2}, 新家昭彦^{1,2}, 松尾慎治^{1,3}, 納富雅也^{1,2,4}

NTT NPC¹, NTT BRL², Tokyo Tech.³

○M. Takiguchi^{1,2}, T. Fujii^{1,3}, H. Sumikura^{1,2}, A. Shinya^{1,2}, S. Matsuo^{1,3}, and M. Notomi^{1,2,4}

E-mail: masato.takiguchi@ntt.com

必要最小限の化合物半導体材料を Si チップに集積することは、光電融合素子や高性能な光デバイスを実現するのに重要である。我々はこれまで自己成長型の化合物半導体ナノワイヤを Si フォトニック結晶中のトレンチ構造に導入することで、レーザ・光スイッチ・受光器を実現してきた[1-3]。しかし、ナノワイヤの構造不均一性やトレンチ-ナノワイヤ間の意図しないエアギャップは、ナノワイヤへの光閉じ込め低下の原因となり、素子性能を制限してしまう。そこで、我々は化合物半導体ナノワイヤをエッチングプロセスで作製することで断面を矩形形状にし、Si フォトニック結晶のトレンチに隙間なく集積させることで、光閉じ込めの高いハイブリッドフォトニック結晶共振器の実現を提案した。前回の報告[4]では、ナノワイヤとトレンチ間にわずかな隙間が生じていたため、光閉じ込めが改善されずレーザ発振にいたらなかった。そこで今回は、ナノワイヤの太さとトレンチ幅をより精密に設計し、エアギャップのない構造を実現した。図1(a)は実際のナノワイヤ導入 Si フォトニック結晶素子である。ナノワイヤは活性層(InGaAsP 5MQW)をもつ InP ウェハをドライエッチングで加工し、それを転写プリント法と原子間力顕微鏡を用いて、L3 共振器内のトレンチに導入した。図1(b)はエアギャップと光閉じ込めの依存性である。図から 25nm 以上の隙間は光閉じ込めを大幅に低減させることが分かる。比較のために、ナノワイヤの太さとトレンチの幅が、(300 nm, 300 nm)、(300 nm, 400 nm)の 2 種類の共振器を作製した。図1(b)は、それぞれのサンプルの PL 測定 (pulse 励起) を行い、L-L 特性をまとめたものである。図からわかるように、前回同様エアギャップのあるサンプルは発振動作を示さなかったが、ギャップレスの素子は明瞭なレーザ発振を示した。さらに、CW 励起の場合についても、レーザ発振を示す線幅の狭窄化 (図1(c))、波長のブルーシフト、光子相関による g2 の減少が確認できた。このことから、本構造により光閉じ込めと熱伝導の改善に成功したといえる。本研究は JSPS 科研費 23H01888 の助成を受けたものである。

[1] M. Takiguchi, et.al., APL Photonics, 2, 046106 (2017)

[2] M. Takiguchi, et.al., ACS Photonics, 7, 1016 (2020)

[3] M. Takiguchi, et.al., ACS Photonics, 7, 3467 (2020)

[4] 滝口他, 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 21a-A308-3

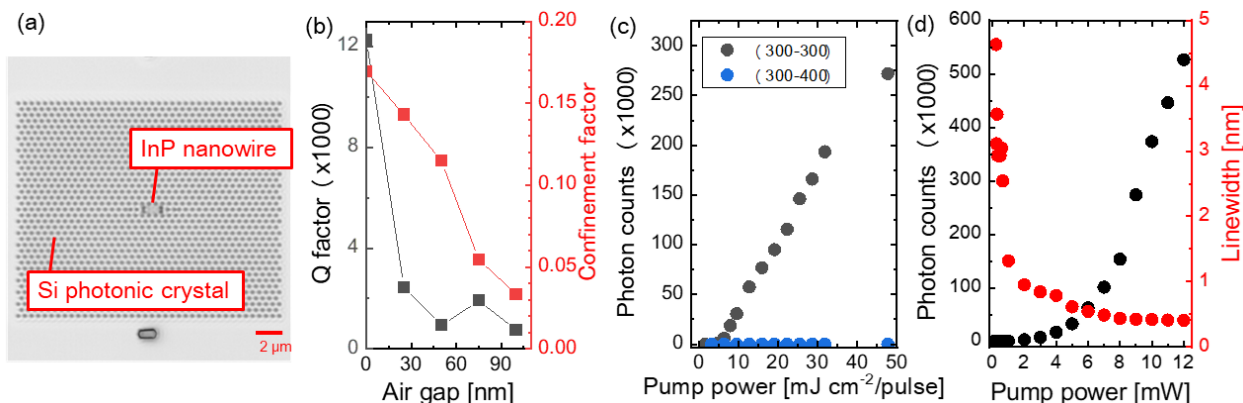


Fig. 1 (a) Optical microscope image of Si photonic crystal cavity with etching nanowire (b) Airgap vs Q factor and optical confinement factor. (c) L-L curve for different samples under pulse excitation. (d) L-L curve under CW excitation.

分割領域フォトリック結晶レーザーの周波数変調増大の検討

Enhancement of frequency modulation of multi-section photonic-crystal lasers

京大院工¹, 東北大院工², KDDI 総合研究所³, 早大理工⁴, ◦森田遼平^{1,2}, 井上卓也¹, 仲野秀栄¹,

De Zoysa Menaka¹, 石崎賢司¹, 石村昇太³, 高橋英憲³, 釣谷剛宏³, 鈴木正敏⁴, 野田進¹

Kyoto Univ.¹, Tohoku Univ.², KDDI Research, Inc.³, Waseda Univ.⁴, ◦R. Morita^{1,2}, T. Inoue¹, S. Nakano¹,

M. De Zoysa¹, K. Ishizaki¹, S. Ishimura³, H. Takahashi³, T. Tsuritani³, M. Suzuki⁴, S. Noda¹

E-mail: ryohei.morita.c1@tohoku.ac.jp, snoda@kuee.kyoto-u.ac.jp

[序] 高出力(>W)・高ビーム品質動作可能なフォトリック結晶レーザー (PCSEL)¹⁾において, 高速(>GHz) な直接変調動作が可能となれば, 衛星間通信をはじめとした自由空間光通信への展開が期待される²⁾. 我々はこれまで, 周波数(FM)変調動作を可能とする分割領域 PCSEL 構造を提案するとともに³⁾, 実際に作製した素子においてワット級 FM 変調動作の初期実証に成功している⁴⁾. 今回, FM 変調動作の変調増大に向けて, 素子構造の改良設計を行ったので報告する.

[解析結果] 分割領域 PCSEL の基本構造の模式図を Fig. 1 (a)に示す. フォトリック結晶共振器は, Fig. 1(b)に示すように, 僅かな格子定数差 Δa を有する 2 領域に分割されており, 発振領域 (直径 $D = 500 \mu\text{m}$) 全体において単一モード発振を維持しつつ, 発振領域内部にバンド端周波数差が導入される. ここで, この格子定数の異なる 2 領域に一定のバイアス電流を注入しつつ, 互いに逆相の高周波変調電流を重畳することで, 2 領域の注入電流の差とバンド端周波数差に比例して, 瞬時発振周波数を高速に変化させることが可能になる³⁾. ここで, 逆相の変調電流注入を実現するための電極構造として, 前回の報告では, Fig. 2(a)に示すように出射面側の n 型電極を分割した構造を作製した⁴⁾. 各分割電極の注入電流割合を変化させた際の, 活性層の注入電流密度分布の計算結果を Fig. 2(b)に示すが, 分割電極から基板を介して活性層に到達するまでに電流が拡散し, 電流密度の変化量が比較的小さいことがわかる. そこで, Fig. 2(c)に示すように, 活性層に近い裏面の p 型電極を分割した構造を新たに検討した. 同構造における活性層の注入電流密度分布は Fig. 2(d)となり, 前回構造と比較して, 5~10 倍程度の大きな電流密度変化が得られることが期待される. 両構造について, 格子定数差を $\Delta a = 1.0 \times 10^{-4}a$ ($a = 276 \text{ nm}$) とし, 直流電流 1.25 A に振幅 0.15 A の逆相正弦波信号を重畳した際の周波数変調量の変化を Fig. 3 に示す. なお, 比較のため, 電極や共振器を分割していない通常の PCSEL の結果も示している. 同図より, p 側電極を分割した PCSEL は, n 側電極を分割した PCSEL よりも, 周波数変化量を 1 桁程度増大可能であることが期待される. 設計構造の作製結果を含め, 詳細は当日報告する.

[謝辞] 本研究の一部は科研費 (22H04915, 24H00430, 24K17622) および BRIDGE の支援を受けた.

[文献] 1) M. Yoshida et al., *Nat. Mater.* **18**, 121 (2019). 2) S. Ishimura et al., *J. Lightw. Technol.* **41**, 3688 (2023). 3) 井上 他, 2023 年春応物, 17p-A303-3 (2023). 4) 仲野 他, 2024 年春応物, 23p-11E-7 (2024).

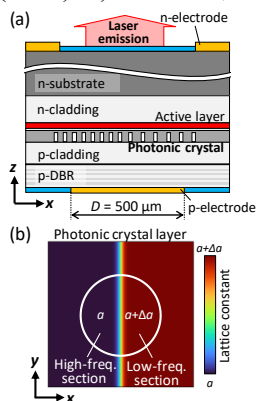


Fig. 1. (a) Schematic of a two-section PCSEL. (b) Lattice constant distribution.

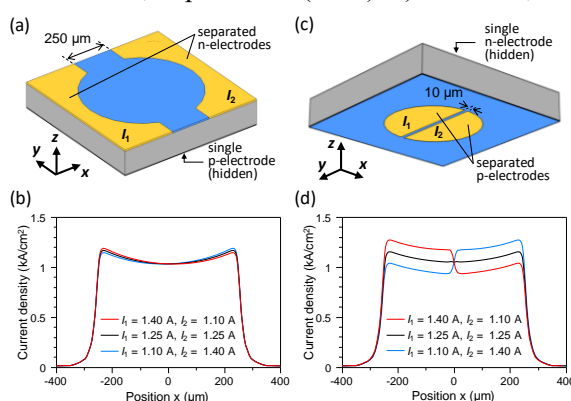


Fig. 2. (a) Schematic structure and (b) calculated current density distribution with separated n-electrodes. (c) Schematic structure and (d) calculated current density distribution with separated p-electrodes.

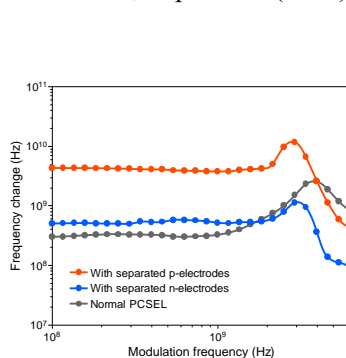


Fig. 3. Calculated frequency change as a function of modulation frequency.

大域的バンド端周波数分布と分割電極導入による短パルス・高出力 フォトリック結晶レーザーの高速変調動作の提案

Proposal of high-speed modulation of high-peak-power short-pulse photonic-crystal surface-emitting lasers via the introduction of global band-edge frequency distribution and split electrodes

京大院工¹, 東北大院工², [○]柴田悠樹¹, 井上卓也¹, 森田遼平^{1,2}, 野田進¹

Kyoto Univ.¹, Tohoku Univ.² [○]Y. Shibata¹, T. Inoue¹, R. Morita^{1,2}, S. Noda¹

E-mail: shibata.y@qoe.kuee.kyoto-u.ac.jp, snoda@kuee.kyoto-u.ac.jp

[序] フォトリック結晶レーザー(PCSEL)¹⁾は、2次元フォトリック結晶の特異点(Γ 点等)での共振作用を用いた高輝度面発光レーザーである。我々は、これまで、大域的バンド端周波数分布を導入した短パルス PCSEL を提案し²⁾、60A の電流注入でピーク出力 500W 級の高出力・短パルス動作の実証に成功している³⁾。上記の短パルス PCSEL において、任意信号による高速(>GHz)変調動作が可能となれば、月-地球間等の超長距離衛星間光通信への展開が期待される。今回、大域的バンド端周波数分布を導入した PCSEL に分割電極構造を導入し、直流電流と変調電流信号を分けて注入することで、高出力かつ高速変調動作を実現する手法を見出したので報告する。

[原理および解析結果] 提案する PCSEL の分割電極構造の模式図を Fig.1(a)に示す。電流注入領域の外径は 1000 μm であり、Fig. 1(c)に示す直流電流 (振幅 I_1) を注入するドーナツ状の領域 A と、Fig. 1(d)に示すパルス電流 (振幅 I_2 、パルス幅 Δt 、クロック周波数 f) を注入する中央領域 B (直径 d) に分割している。また、フォトリック結晶層には、中央が高周波数となるバンド端周波数分布 [Fig. 1(b)]を導入しており、禁制帯の効果により光を中央に局在させる働きを有する。同構造において、パルス電流注入前 ($t=t_1$) および注入時 ($t=t_2$) のデバイス内部のキャリア分布および光子密度分布の計算結果の一例を Fig.1(f)(g)に示す。 $t=t_1$ においては、領域 A のみにキャリアが蓄積された状態となり、光が局在する中央部の吸収損失が大きいので、発振が抑制される。一方 $t=t_2$ では、領域 B へのキャリア注入により吸収損失が減少して発振が開始されるが、その後、Fig.1(g)に示すように領域 A に蓄積されたキャリアをも消費しながら光が全体に広がるため、Fig.1(e)に示すような高出力な短パルス発振が得られることが期待される。具体的に $d=200 \mu\text{m}$ 、 $I_1=18 \text{ A}$ 、 $I_2=0.4 \text{ A}$ 、 $f=0.5 \text{ GHz}$ 、 $\Delta t=1 \text{ ns}$ として、Fig.2(a)に示す任意電流信号を領域 B に注入した際の、光出力の時間変化を解析した結果を Fig.2(b)に示す。入力信号に応じた 300W 級の高出力・短パルス信号が得られた。本研究の一部は科研費の支援を受けた。[文献] 1) Noda *et al.*, Adv. Opt. Photon. **15**, 977 (2023). 2) Inoue *et al.*, Nat. Commun. **14**, 50 (2023). 3) 上田他, 2024 春季応物 22p-11E-7.

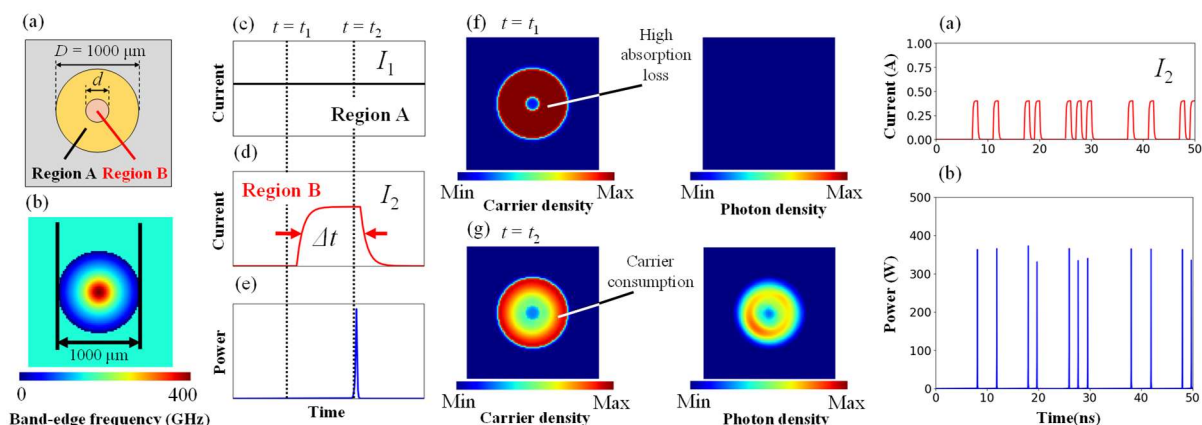


Fig. 1 (a)(b) Schematic of the split electrodes and the band-edge frequency distribution of the proposed PCSEL. (c)(d) Injection current waveform for each electrode. (e) Temporal change of the output power. (f)(g) Carrier and photon density before and after lasing oscillation.

Fig. 2. (a) Pulse injection current in Region B. (b) Calculated output power of the proposed PCSEL.

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演)：【CS.6】 4.5 Nanocarbon and 2D Materials、17 ナノカーボン・二次元材料のコードシェア

[18a-A35-1~7] CS.6 4.5 Nanocarbon and 2D Materials、17 ナノカーボン・二次元材料のコードシェア

[18a-A35-1]

Self-assembly of dopant molecules on MoS₂ monolayer for degeneracy/heavily doping

○(PC)Puneet Jain¹, Shotaro Yotsuya¹, Kosuke Nagashio¹, Daisuke Kiriya¹ (1.The Univ. of Tokyo)

[18a-A35-2]

Development of a Stacking Method for Janus TMDs Toward the Formation of Janus TMD Superlattices

○Tianyishan Sun^{1,2}, Weizi Lu^{1,2}, Soma Aoki^{1,2}, Dingkun Bi^{1,2}, Hiroto Ogura^{1,2}, Toshiaki Kato^{1,2} (1.Grad. Sch. of Eng., Tohoku Univ., 2.AIMR, Tohoku Univ.)

[18a-A35-3]

Relationship between the surface roughness of SiO₂/Si sub. and the PVD-WS₂ film

○Jaehyo Jang¹, Naoki Matsunaga¹, Soma Ito¹, Hitoshi Wakabayashi¹ (1.Tokyo Tech)

[18a-A35-4]

Fabrication and Characterization of Germanium Monosulfide Field-Effect Transistors

○Qinqiang Zhang¹, Ryo Matsumura¹, Kazuhito Tsukagoshi¹, Naoki Fukata¹ (1.MANA-NIMS)

[18a-A35-5]

Energetics and electronic structures of Nb-doped WS₂ layers

○YANLIN GAO¹, SUSUMU OKADA¹ (1.University of Tsukuba)

[18a-A35-6]

Engineering MoSe₂ Defects via SHI Irradiation for Improved NH₃ Gas Sensing: A DFT Study

○(DC)Aditya Kushwaha¹, Shalini Vardhan¹, Neeraj Goel¹ (1.Netaji Subhas University of Technology, Dwarka, Sector - 3, Delhi - 110078, India)

[18a-A35-7]

Pt Nanocluster Decoration on WSe₂ for Enhanced NO₂ Sensing: A DFT Investigation

Neetu Raj Bharti¹, ○(DC)Aditya Kushwaha¹, Neeraj Goel¹ (1.Netaji Subhas University of Technology, Dwarka, Sector - 3, Delhi - 110078, India)

Self-assembly of dopant molecules on MoS₂ monolayer for degeneracy/heavily doping

The Univ. of Tokyo¹, [○]Puneet Jain¹, Shotaro Yotsuya¹, Kosuke Nagashio¹, and Daisuke Kiriya¹

E-mail: jain@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

Transition metal dichalcogenides (TMDs) are class of materials with general formula MX₂, where M is transition metal element from group IV, V, and VI (Mo, W, etc.); while X is chalcogen (S, Se, or Te). As the thickness of TMD decreases from bulk to monolayer, 2D TMDs exhibits a series of specific properties. Among all TMDs, molybdenum disulfide (MoS₂) is one of the few with a natural layered structure, indicating that MoS₂ can be stripped easily using scotch tape, to obtain high-quality MoS₂ monolayer, without complicated chemical synthesis. MoS₂ monolayer is an emergent semiconductor having a direct bandgap of 2.4 eV, and has potential applications in nanoelectronics, optoelectronics, and flexible electronics, etc.¹⁾

As stated about, pristine MoS₂ monolayer is semiconducting in nature. Thin-film transistors (TFTs) using MoS₂ ML as channel, shows n-type characteristics with I_{ON} and I_{OFF}. By doping MoS₂, we can improve the device performance by controlling the carrier concentration. In electronic devices, the doping technique can improve the on-state current by reducing the effective barrier and contact resistance height at the metal/TMD junction. In the present work, we have fabricated TFT with MoS₂ ML as channel; and bismuth as source/drain. Fig. 1 shows the schematic of the device. The TFT was then doped (i.e., channel doping) with an asymmetrical molecule. It

has been found that doping leads to degeneracy, as shown in Fig. 2. To understand more about the doping mechanism, we fabricated an array of devices, with MoS₂ ML as channel; and bismuth as source/drain. The array was fabricated using photolithography, where the channel length and width are varied from 5 to 50 μm. It has been found that doping leads to degeneracy/heavily doped situation, depending upon the channel width and channel length, i.e., doping depends on the length and width of the MoS₂ ML channel. More results will be discussed in the meeting.

1. O. Samy, S. Zeng, M.D. Birowosuto, and A.E. Moutaouakil *Crystals* **2021**, *11*, 355.

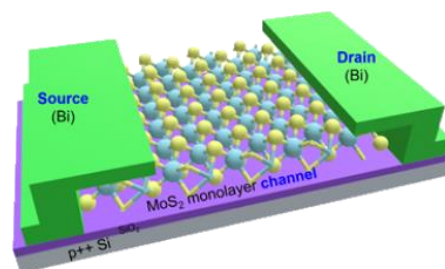


Fig. 1: Schematic of the fabricated device, with MoS₂ ML as channel, and bismuth as source/drain.

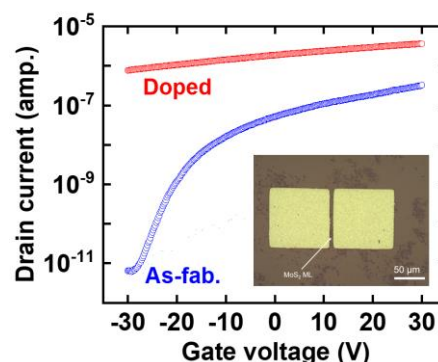


Fig. 2: IV characteristics of as-fabricated device (shown by blue curve) and doped device (shown by red curve). OM image of the fabricated device with MoS₂ ML as channel, is shown in also shown in the inset

ヤヌス TMD 超格子形成に向けたヤヌス TMD 積層手法の開発

Development of a Stacking Method for Janus TMDs Toward the Formation of Janus TMD Superlattices

東北大院工¹, 東北大材料科学高等研究所²,

○孫 田依姍^{1,2}, 盧 衛子^{1,2}, 青木 颯馬^{1,2}, 畢 定坤^{1,2}, 小倉 宏斗^{1,2}, 加藤 俊顕^{1,2}

Grad. Sch. of Eng., Tohoku Univ.¹, Adv. Inst. Mater. Res. (AIMR), Tohoku Univ.²

Tianyishan Sun^{1,2}, Weizi Lu, Soma Aoki^{1,2}, Dingkun Bi^{1,2}, Hiroto Ogura^{1,2}, Toshiaki Kato^{1,2}

E-mail: sun.tianyishan.r5@dc.tohoku.ac.jp

上下面が異種のカルコゲン原子で構成されるヤヌス遷移金属ダイカルコゲナイド(TMD)は、面直方向に自発的に分極が生じることから、従来 TMD には無い新物性発現が理論的に予測されており大きな注目を集めている。しかしながら、ヤヌス TMD 合成には原子オーダーの置換反応技術が必須であり、実験研究が世界的にほとんど進展していないのが現状である。

これまで我々は、TMD の蛍光発光(PL)スペクトルをヤヌス化反応中に直接観測可能とする“その場観測ヤヌス化装置”を開発し、ヤヌス化中 TMD の PL スペクトル時間発展を取得することに成功している。この高精度ヤヌス化技術を活用することで、ヤヌス TMD ナノチューブの創成[1]、ヤヌス TMD ナノスクロールの創成[2]、およびヤヌス TMD と通常の TMD におけるヘテロ二層モアレ超格子の創成[3]を報告している。この新材料のヤヌス TMD を複数層積層し超格子構造を形成することで、面直ダイポール由来の特異な物性発現が期待できるが未だに報告例が無い。そこで、本研究ではヤヌス TMD 超格子創成のための、積層プロセス開発を目的に研究を行った。

機械剥離で採取した単層二セレン化タングステン (WSe_2) に対して、ヤヌス化プロセスにより WSeS を合成した。この WSeS をポリマー転写し積層を試みたところ、プロセス中にスクロール化して積層構造が得られないことが判明した。これはスクロース実験の結果とも一致している。そこで、次にヤヌス化した WSeS の表面に再び単層 WSe_2 を積層転写してヘテロ WSe_2/WSeS 構造を形成し、その後追加でヤヌス化を行うアプローチを行った。その結果、ヤヌス WSeS 由来の明確なピークが検出され二層 WSeS の創成に成功したと言える。さらに、単層 WSeS やヘテロ二層 WSeS/WSe_2 と比較して、わずかに低波数側にラマンピークがシフトすることが判明した (Fig. 1)。本手法を活用し、今後さらに積層数を増やすことでヤヌス TMD の超格子形成が期待できる。

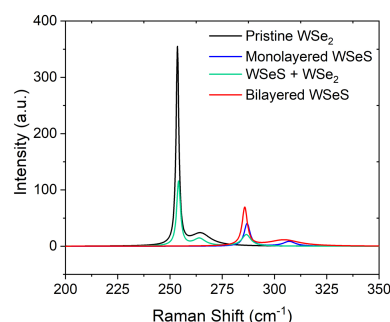


Fig. 1. 単層 WSe_2 (黒), 単層 WSeS (青), 二層 WSeS/WSe_2 (緑), および二層 WSeS (赤) のラマンスペクトル。

[1] Y. Nakanishi, *et al.*, Adv. Mater. 35, 2306631-1-11 (2023).

[2] M. Kaneda, *et al.*, ACS Nano 18, 2772–2781 (2024).

[3] W. Zhang, *et al.*, Small Structures, 5 (2024), 2300514-1-8.

SiO₂/Si 基板の表面荒さと PVD-WS₂ 膜との関係

Relationship between the surface roughness of SiO₂/Si sub. and the PVD-WS₂ film

東工大 °(M1) Jang Jaehyo, (D) 松永 尚樹, (M1) 伊東 壮真, 若林 整

Tokyo Institute of Technology, °(M1) Jaehyo Jang, (D) Naoki Matsunaga, (M1) Soma Ito and Hitoshi Wakabayashi, E-mail: jang.j.ac@m.titech.ac.jp

【緒言】 シリコン FET がスケーリングによる短チャネル効果によって性能が劣化する問題を解決するため、層状物質である遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)の一つである WS₂ 膜が注目されている^[1]。WS₂ 膜の実用化には結晶性の向上が必要である^[2]。基板表面の荒さ (Root mean square surface roughness) は WS₂ 膜の結晶性に影響を与える原因であるが^[4]、WS₂ 膜と基板表面の荒さの定量的な関係は知られていない。そこで本研究では、Si/SiO₂ 基板表面の荒さが PVD-WS₂ 膜の表面荒さに与える影響を調査する。

【方法】 SiO₂/Si 基板を SPM cleaning した後、RMS roughness が異なる基板を用意するため、3 つの基板を 1% diluted HF (DHF) に 0, 30, 90 秒間それぞれ浸した。その後、約 1.3 nm の WS₂ 膜を RF Magnetron Sputtering で成膜した。RF パワーは 50 W, Ar 圧力は 0.55 Pa, ターゲットと基板間の距離は 150 mm, 基板温度は 300°C に設定した。その後、硫黄を補填するために Sulfur Vapor Annealing (SVA) を行い^[3]、as-sputtered WS₂ 膜と比較した。成膜前後の RMS は Atomic Force Microscope (AFM) で評価した。また、WS₂ 膜の結晶性は Raman Spectroscopy で評価した。

【結果】 Figure 1 の結果から、WS₂ w/o SVA 膜と SiO₂ の場合、MoS₂ と同様に^[4]、DHF 処理時間を短くするほど RMS roughness が小さくなることがわかる。一方、WS₂ w/ SVA 膜の場合、RMS roughness が大きくなってしまふことがわかる。ここで、Figure 2 のラマン分光結果から、WS₂ w/o SVA 膜には WS₂ の E_{2g}¹ と A_{1g} ピークを確認できないが、WS₂ w/ SVA 膜の場合は E_{2g}¹ と A_{1g} ピークを確認することができた。したがって、WS₂ 膜の agglomeration の可能性もあると考えられる。さらに、0 秒の RMS が最も大きくなってしまふことから、下地が平坦で表面積が小さい場合は、WS₂ 膜は agglomeration しやすいと推測できる。

【結言】 WS₂ 膜が薄い場合、SVA により agglomeration が起こることがわかった。特に、下地 SiO₂ 表面が平坦な場合に顕著であること

がわかった。今後、キャップ膜の形成を試みて、詳細に調査する予定である。

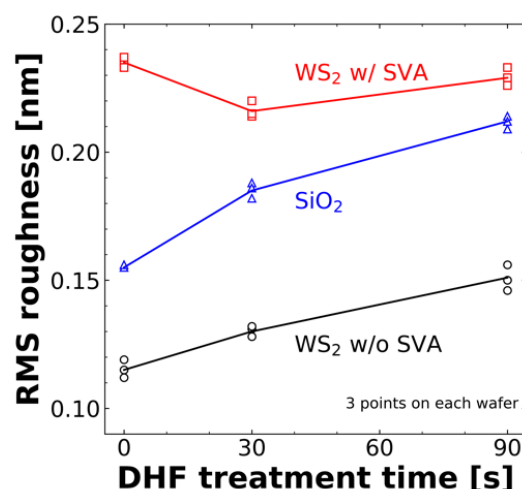


Figure 1: RMS surface roughness on DHF treatment time SiO₂, WS₂ w/ and w/o SVA.

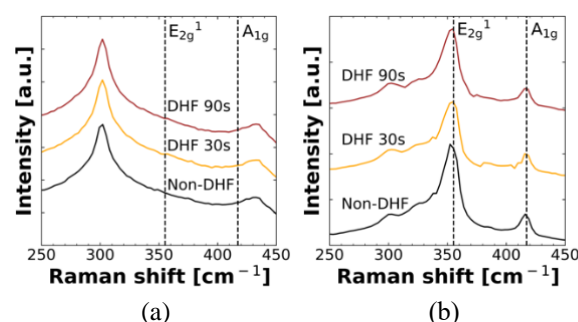


Figure 2: The Raman spectroscopy results of RF sputter-deposited WS₂ film (a) w/o SVA and (b) w/ SVA. E_{2g}¹: 355.2 cm⁻¹ A_{1g}: 417.2 cm⁻¹ [5].

【謝辞】 本研究の一部は、文部科学省次世代 X-nics 半導体創生拠点形成事業(JPJ011438)及び JSPS 科研費(20H05880)の助成を受けた。

【参考文献】

- [1] A. Sebastian, *et al.*, *Nature Communications*, 2021.
- [2] M. Acar, *et al.*, *Ceramics International*, 2020.
- [3] Takuya Hamada, *et al.*, *IEEE Journal of the Electron Devices Society*, 2021.
- [4] Takumi Ohashi, *et al.*, *Applied Physics Express*, 2017.
- [5] A. Berkdemir, *et al.*, *Scientific Reports*, 2013.

一硫化ゲルマニウム電界効果トランジスタの製造と特性評価

Fabrication and Characterization of Germanium Monosulfide Field-Effect Transistors

物質・材料研究機構 ナノアーキテクトニクス材料研究センター

○張 秦強, 松村 亮, 塚越 一仁, 深田 直樹

NIMS-MANA, °Qinqiang Zhang, Ryo Matsumura, Kazuhito Tsukagoshi, Naoki Fukata

E-mail: FUKATA.Naoki@nims.go.jp

【Background】

The discovery of graphene stimulates the development of low dimensional materials based functional devices [1]. However, the gapless behaviors of graphene restrain itself for next-generation semiconducting electronics and optoelectronics. The germanium monosulfide (GeS), as one of the newly re-discovered and promising two-dimensional layered semiconductors, has recently emerged. Previously, we have achieved the synthesis of large area germanium monosulfide (GeS). In this abstract, we focus on the fabrication of the GeS field-effect transistors (FETs) and its current-voltage (I-V) characterizations.

【Experimental methods and results】

The large-area GeS thin films were synthesized by using the vapor transport method as introduced previously [2]. Fig. 1(a) shows the fabrication process flow. The lithography and reactive ion etching (mixed SF₆/Ar gas) were applied for patterning of GeS channels with length of 6 μm and width of 160 μm. Afterwards, source and drain electrodes were formed using the lithography and electron-beam evaporation. The highly doped Si substrates 525 μm with 300 nm SiO₂ layer were utilized (Fig. 1(b)). The optical image shows the fabricated GeS FET (Fig. 1(c)).

The I_{ds} - V_{ds} characteristics for gate-voltage in the range from 60 to -60V are shown in Fig. 2. The fabricated GeS FET shows the clear gate-voltage dependent I_{ds} - V_{ds} characteristics. It is under optimization to achieve a higher on-current for GeS FETs. Other details, such as diode-like I-V characteristics, photovoltaic behaviors, hysteresis loops and so forth, will be introduced at the conference.

[1] K. S. Novoselov, et al, Science, 306(5696), 666, (2004).

[2] Q. Zhang et. al, ACS Appl. Nano Mater., 6(8), 6920, (2023).

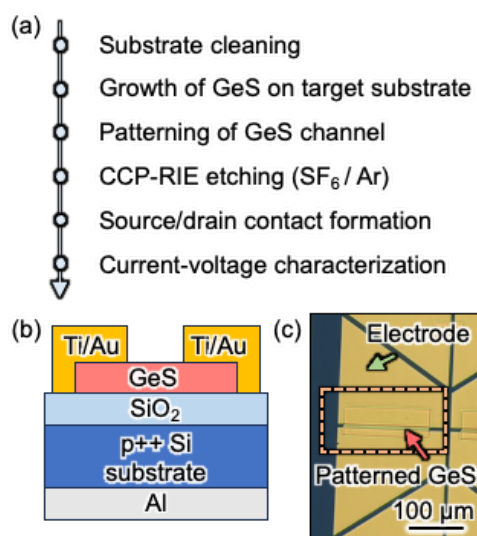


Fig. 1. (a) The fabrication process flow, (b) the schematic device structure, and (c) the optical image of the GeS FET.

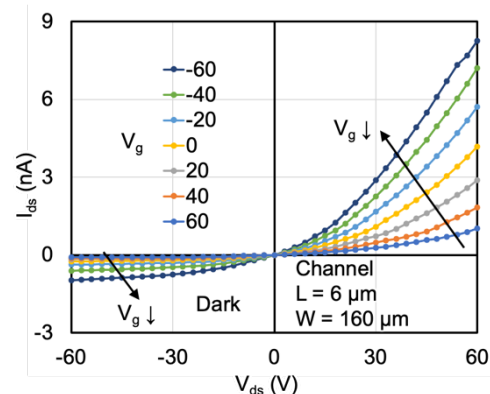


Fig. 2. Output characteristics of the GeS FET.

Energetics and electronic structures of Nb-doped WSe layers

Yanlin Gao, Susumu Okada

University of Tsukuba

E-mail: ylgao@comas.frsc.tsukuba.ac.jp

Janus transition metal dichalcogenides (Janus TMDs) are a novel two-dimensional semiconductor. They consist of 3 atomic layers, where the transition metal layer is sandwiched by different chalcogen atom layers. This structural asymmetry produces a dipole moment normal to their layers, making them fascinating materials. The dipole moment provides the freedom to modulate the electronic structures of their stacking structures [1]. For example, bilayer Janus WSe with SSe interface has staggered band edge alignment between two layers, while it has shallower or deeper band edge when it has SS or SeSe interface. Additionally, introduction of carriers to semiconductors by doping impurity elements is an essential for their practical device implementation. Nb is a common p-type dopant for TMDs to introduce carriers [2-3]. In this work, we aim to explore the energetics and electronic structures of Nb-doped WSe based on the density functional theory.

In this paper, we considered $n \times n$ lateral supercell, in which one Nb atom were substitutionally doped ($n=2-4$) to investigate the effect of the dopant density on the electronic structure of WSe. Our calculations showed that Nb doping lowers the Fermi level of WSe, which indicates that Nb works as a p-dopant. The electronic structure of monolayer Nb-doped WSe is sensitive to Nb concentration. Nb state is localized around the valence band edge of WSe for the Nb-doped WSe with doping concentration less than 6%. In contrast, the localized states associated with Nb are absent when the doping concentration is more than 6%. Aside from the monolayer doping system, we also considered the bilayer doping systems. For the Nb-doped WSe bilayer system, the highest two branches of the valence band split into upper and lower branches due to the interlayer interaction when the doping concentration is less than 6%, so the highest branch is unoccupied. In contrast, the second-highest branch is fully filled. For the SSe interface cases, the full-filled state at the Γ point is contributed by the top layer, while the unoccupied state at the Γ point is distributed on both the top and bottom layers. For the SS or SeSe interface cases, both states at the Γ point near the Fermi level are distributed on both layers.

References

- [1] Y. Gao et al. *Appl. Phys. Express* **16**, 075004 (2023).
- [2] Y. Murai et al. *ACS Nano* **15**, 19225 (2021).
- [3] K. Hisama et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **61**, 015002 (2022).

Engineering MoSe₂ Defects via SHI Irradiation for Improved NH₃ Gas Sensing: A DFT Study

Aditya Kushwaha¹, Shalini Vardhan¹, Neeraj Goel¹

¹Department of Electronics and Communication Engineering, Netaji Subhas University of Technology, Delhi, India

E-mail: aditya.kushwaha.phd21@nsut.ac.in

1. Introduction

Ammonia (NH₃) gas, common in agriculture and industry, is toxic and necessitates real-time monitoring due to unreliable odour detection[1]. While two-dimensional (2D) transition metal dichalcogenides (TMDs) offer promising NH₃ gas sensor properties due to improved sensitivity, selectivity, and fast response [2]. However, their dense stacking structure limits gas interaction, reducing sensitivity at room temperature. To overcome this, our study presents theoretical findings on utilizing swift heavy ions (SHI) irradiation to induce targeted defects in the MoSe₂ lattice [3], thereby enhancing NH₃ adsorption and improving sensing performance. Density functional theory (DFT) calculations compared NH₃ sensing in pristine MoSe₂ and SHI-modified MoSe₂ with Se (Se-VAC) and Mo (Mo-VAC) vacancies. Results indicate Se-VAC has higher NH₃ sensitivity, suggesting improved sensor performance due to increased surface-to-volume ratio.

2. Computational Methods

DFT calculations were performed using the DMol³ package within Material Studio software. Geometry optimization employed a 5x5x1 k-point grid and a 4.9 Å cutoff radius. Convergence tolerances were set to 1.0x10⁻⁵ Ha for energy, 0.002 Ha/Å for force, and 0.005 Å for displacement. The Perdew-Burke-Ernzerh GGA functional (PBE) with DNP basis set described the exchange-correlation term, while Grimme's method with DFT Semi-core Pseudopotentials (DSPP) computed adsorption energies [4]. A 3x3x1 MoSe₂ monolayer supercell served as the model system, incorporating Se and Mo vacancy configurations.

3. Result and Discussion

DFT calculations using the DMol³ package revealed structural and electronic property modifications upon SHI irradiation of MoSe₂ (Fig. 1). Pristine MoSe₂ exhibited a bandgap of 1.482 eV, which significantly decreased to 0.061 eV and 0.992 eV for Mo-VAC and Se-VAC configurations, respectively. This suggests a potential enhancement in electrical conductivity due to the defect states introduced by SHI irradiation.

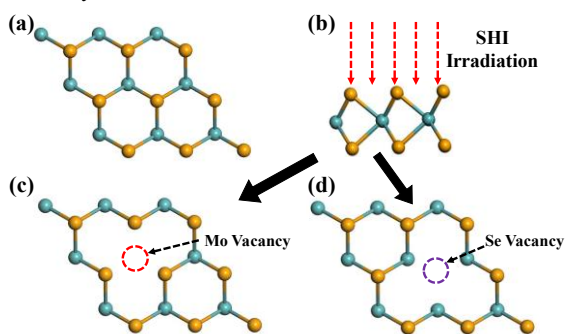


Fig. 1. Supercell structures of MoSe₂: (a) pristine, (b) SHI-irradiated, (c) Mo-VAC, and (d) Se-VAC.

Furthermore, charge density difference analysis (Fig. 2) indicated a stronger interaction between NH₃ and Se-VAC compared to pristine MoSe₂ and Mo-VAC. This is quantified by Mulliken analysis, showing a higher electron donation (0.057e) from NH₃ to Se-VAC, suggesting a more favourable adsorption process. These findings, along with the calculated adsorption energy (details in Eq. 1), support the hypothesis that Se-VAC defects promote enhanced NH₃ adsorption on MoSe₂ [5].

$$E_{ad} = E_{NH_3/System} - E_{System} - E_{NH_3} \quad (1)$$

This formula considers the total energies of the NH₃-adsorbed system

($E_{NH_3/System}$), the isolated MoSe₂ system (E_{System}), and the free NH₃ molecule (E_{NH_3}) (as details in Eq. 1). The calculated E_{ad} values revealed a trend of increasing strength: -0.939 eV for pristine MoSe₂, -0.951 eV for Mo-VAC, and -1.015 eV for Se-VAC. Notably, the Se-VAC configuration exhibited the most favourable adsorption energy, signifying a stronger interaction between NH₃ and the defect sites. This aligns with the observed enhanced charge transfer, suggesting that Se-VAC defects promote superior NH₃ adsorption on MoSe₂.

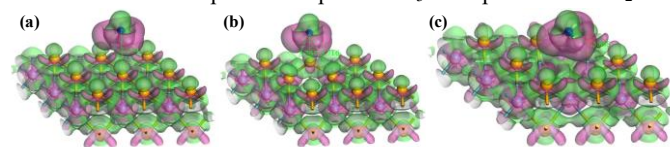


Fig. 2. CDD for MoSe₂ configurations: (a) pristine, (b) Mo-VAC, (c) Se-VAC. Green indicates electron accumulation; pink indicates depletion.

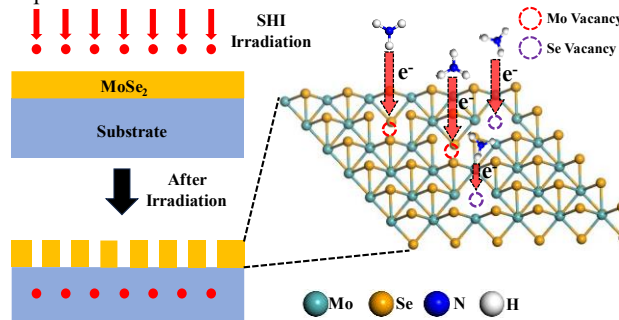


Fig. 3. Schematic illustration of the proposed NH₃ sensing mechanism in MoSe₂.

SHI irradiation is investigated as a method to improve NH₃ gas sensing in MoSe₂. SHI interacts with the material through elastic collisions (nuclear energy loss, S_n) and electronic excitations (electronic energy loss, S_e). The high S_e promotes defect formation within the MoSe₂ lattice. These defects are hypothesized to act as adsorption sites for NH₃ molecules, enhancing their interaction with the sensing material. As NH₃ is electron-donating, this stronger interaction can lead to a more significant change in the electrical properties of MoSe₂, ultimately resulting in a more pronounced and selective response towards NH₃ gas detection.

4. Conclusion

Our DFT study explores NH₃ gas sensing using MoSe₂ and SHI-modified MoSe₂ structures. The results suggest that Se-VAC defects, created through SHI irradiation, hold promise for enhanced NH₃ detection. This is attributed to the increased availability of active sites within the SHI-modified MoSe₂ structure, facilitating stronger NH₃ molecule adsorption.

REFERENCES

- [1] S. Vardhan and R. R. Singh, "Design, simulation and performance comparison of Sol rectangular waveguide and SMF for methane detection," in *Integrated Photonics Platforms II*, 2022, vol. 12148: SPIE, pp. 107-112.
- [2] A. Kushwaha, R. Kumar, and N. Goel, "Chemiresistive gas sensors beyond metal oxides: Using ultrathin two-dimensional nanomaterials," *FlatChem*, p. 100584, 2023.
- [3] S. De, M. K. Rajbhar, G. Sanyal, B. Chakraborty, C. S. Sharma, and S. Chatterjee, "Augmented ammonia sensing of ion-beam modified MoSe₂," *Surfaces and Interfaces*, vol. 49, p. 104394, 2024.
- [4] Y. Gui, S. Zhu, and X. Chen, "Gas-sensing properties of Cu₂S-MoSe₂ nanosheets to NO₂ and NH₃ gases," *ACS omega*, vol. 6, no. 25, pp. 16517-16523, 2021.
- [5] X. Hu, Y. Gui, Y. Liu, L. Xu, L. Ran, and X. Chen, "Adsorption characteristics of H₂S, SO₂, SO₂F₂, SOF₂, and N₂ on NiO-MoSe₂ monolayer for gas-sensing applications," *Vacuum*, vol. 193, p. 110506, 2021.

Pt Nanocluster Decoration on WSe₂ for Enhanced NO₂ Sensing: A DFT Investigation

Neetu Raj Bharti¹, Aditya Kushwaha¹, Neeraj Goel¹

¹Department of Electronics and Communication Engineering, Netaji Subhas University of Technology, Delhi, India

E-mail: neetu.bharti.phd23@nsut.ac.in

1. Introduction

Gas sensors play a crucial role in various aspects, from ensuring safety to environmental conditions. NO₂ is indeed a harmful gas, primarily emitted from the combustion of fossil fuels and industrial activities, causing health problems and contributing to pollution [1]. Decorating noble metals on 2D transition metal dichalcogenide (TMD) nanomaterial may benefits like enhanced sensitivity, selectivity, fast response and so on [2]. In this work, a density functional theory (DFT) study compared NO₂ sensing in pristine WSe₂, one Pt atom decorated at the hollow site (WSe₂-1Pt), two Pt atoms decorated at a hollow site (WSe₂-2Pt) and three Pt atoms decorated at a hollow site (WSe₂-3Pt) over WSe₂ monolayer. To enhance the sensitivity response of WSe₂ upon NO₂, the decoration of the Pt atom was proposed to improve the chemical activity and electron mobility of the whole system.

2. Computational Methods

This study utilized material studio with DMol³ package for DFT calculation. Optimization is performed with a 3x3x1 k-point grid and a global cut-off radius of 5 Å [3]. Convergence criteria are set at 1.0x10⁻⁵ Ha for energy, 0.002 Ha/Å and 0.005 Å for maximum force and maximum displacement respectively. The generalized gradient and Perdew-Burke-Ernzerh approximation with the double numerical plus polarization basis set was set employed for the exchange-correlation term [4]. Tkatchenko-Scheffler method with DFT semi-core Pseudopotentials was used for calculating adsorption energies.

3. Result and Discussion

Fig. 1 display 4x4x1 supercell structure of pristine WSe₂, WSe₂-1Pt, WSe₂-2Pt, WSe₂-3Pt, and their bandgap calculation using DMol³ package, provided values are 1.567eV, 0.85eV, 0.116eV, 0.089eV respectively. This significant decrease in bandgap with Pt decoration suggests a substantial enhancement in conductivity.

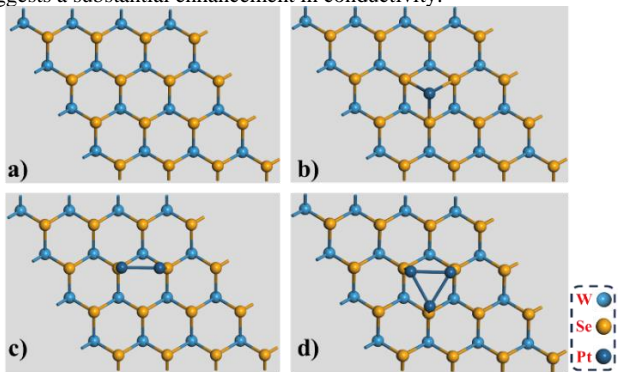


Fig.1 Supercell of (a) Pristine WSe₂, (b) WSe₂-1Pt, (c) WSe₂-2Pt, (d) WSe₂-3Pt.

Fig. 2 demonstrates the most stable configuration after optimization and the sensing schematic of the proposed structure. Pt atoms assist catalytic oxidation, extracting electrons from the WSe₂ monolayer attributed to the difference in Fermi levels. NO₂ pulls out electrons from Pt atom(s). Moreover, the Fig. 2 configuration is also the most stable among the proposed structures. The adsorption energy (E_{ad}) was calculated using eq 1 [5]:

$$E_{ad} = E_{NO_2/System} - E_{System} - E_{NO_2} \quad (1)$$

where, $E_{NO_2/System}$, E_{System} , and E_{NO_2} are the total energies of the NO₂ adsorbed system, isolated system, and NO₂, respectively. E_{ad} for WSe₂-1Pt, WSe₂-2Pt and WSe₂-3Pt were determined as -2.08eV, -2.80eV, and -3.07eV, respectively. Among, all the proposed structures WSe₂-3Pt shows enhanced sensing performance towards NO₂ because of higher E_{ad} .

This result is further supported by charge density difference (CDD) and Mulliken charge analysis.

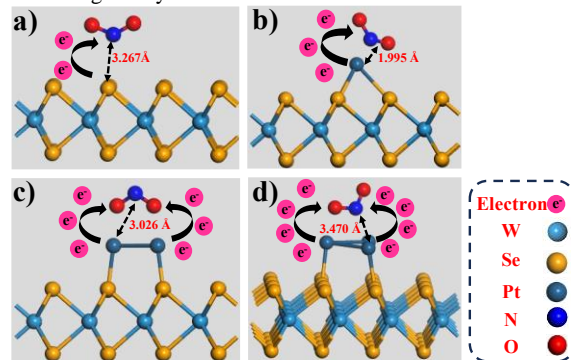


Fig 2. Schematic diagram of sensing mechanism of (a) Pristine WSe₂, (b) WSe₂-1Pt, (c) WSe₂-2Pt, (d) WSe₂-3Pt.

Fig. 3 shows the charge density difference (CDD) between NO₂ and the sensing layer. According to Mulliken analysis, the total charge over NO₂ was -0.192e, -0.234e, -0.230e, and -0.298e for pristine WSe₂, WSe₂-1Pt, WSe₂-2Pt, WSe₂-3Pt respectively. WSe₂-3Pt displayed higher electron withdrawal, exhibited superior gas sensing due to enhanced catalytic activity, modified electronic properties and influenced charge carrier.

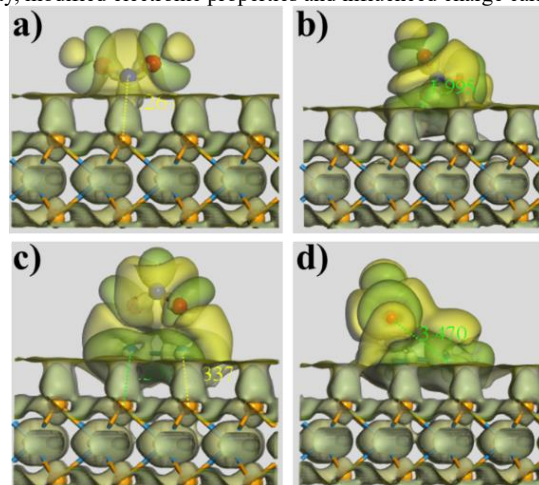


Fig.3 CDD of (a) Pristine WSe₂, (b) WSe₂-1Pt, (c) WSe₂-2Pt, (d) WSe₂-3Pt. Green and Yellow color depicts electron accumulation and depletion.

4. Conclusion

WSe₂ and Pt decorated WSe₂ structures are investigated for the sensing of NO₂ molecule using the DFT method. The result indicates that the WSe₂-3Pt exhibits a promising configuration for NO₂ sensing as compared to other structures. This configuration offers a high density of active sites and a stronger NO₂ adsorption energy compared to other Pt-decorated WSe₂ structures.

REFERENCES

- [1] A. Kushwaha and N. Goel, "Edge enriched MoS₂ micro flowered structure for high performance NO₂ sensor," *Sensors and Actuators B: Chemical*, vol. 393, p. 134190, 2023.
- [2] A. Kushwaha, R. Kumar, and N. Goel, "Chemiresistive gas sensors beyond metal oxides: Using ultrathin two-dimensional nanomaterials," *FlatChem*, p. 100584, 2023.
- [3] D. Zhang, D. Wang, W. Pan, M. Tang, and H. Zhang, "Construction and DFT study of Pd decorated WSe₂ nanosheets for highly sensitive CO detection at room temperature," *Sensors and Actuators B: Chemical*, vol. 360, p. 131634, 2022.
- [4] Z. Lu, Y. Zhai, Q. Liang, and W. Wu, "Promoting sensitivity and selectivity of NO₂ gas sensor based on metal (Pt, Re, Ta)-doped monolayer WSe₂: A DFT study," *Chemical Physics Letters*, vol. 755, p. 137737, 2020.
- [5] Z. Chen *et al.*, "Dissolved gas analysis in transformer oil using Pt-doped WSe₂ monolayer based on first principles method," *Ieee Access*, vol. 7, pp. 72012-72019, 2019.

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.7】 6.1 強誘電体薄膜、13.3 絶縁膜技術、13.5 デバイス/配線/集積化技術のコードシェア

[18p-B3-1~12] CS.7 6.1 強誘電体薄膜、13.3 絶縁膜技術、13.5 デバイス/配線/集積化技術のコードシェア

[18p-B3-1]

強誘電体ゲートFETを用いた物理リザーバー計算における分極状態と学習性能の関係

○請関 優¹、山田 洋人¹、藤村 紀文¹、横松 得滋²、前中 一介²、Kasidit Toprasertpong³、高木 信一³、吉村 武¹ (1.阪公大工、2.兵庫県大工、3.東大工)

[18p-B3-2]

Imprint Behavior of Ferroelectric Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ Thin Film: Impact of Wake-up

○(D)Zhenhong Liu¹, Zuocheng Cai¹, Mitsuru Takenaka¹, Shinichi Takagi¹, Kasidit Toprasertpong¹ (1.Univ. Tokyo)

[18p-B3-3]

HZO強誘電体キャパシタにおけるwake-up特性の周波数・温度依存性と物理機構の考察

○伊藤 広恭¹、田原 建人¹、川野 真琴¹、竹中 充¹、高木 信一¹、トープラサートポン カシディット¹ (1. 東大院工)

[18p-B3-4]

Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ MFMキャパシタに対する最初の電界印加時における欠陥生成と強誘電性の相関

○森田 行則¹、浅沼 周太郎¹、太田 裕之¹、右田 真司¹ (1.産総研)

[18p-B3-5]

強誘電性HfO₂キャパシタにおける極薄膜下での強誘電性の消失

○鳥海 明¹、右田 真司² (1.自由業、2.産総研)

[18p-B3-6]

強誘電性HfO₂の分極反転時間からみた分極反転機構の考察

○鳥海 明¹、右田 真司² (1.自由業、2.産総研)

[18p-B3-7]

AlN微粒子を均一に添加した多層Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂薄膜の強誘電体特性の評価

○高野 貴裕¹、山口 直¹、大森 和幸¹、村中 誠志¹ (1.ルネサスエレクトロニクス株式会社)

[18p-B3-8]

Electro-optic properties of Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ thin films on (La, Sr)MnO₃/SrTiO₃(100)

○(D)Afeefa Dastgir¹, Yuan Xueyou¹, Yufan Shen², Daisuke Kan², Yuichi Shimakawa², Tomoaki Yamada^{1,3} (1.Nagoya Univ., 2.Kyoto Univ., 3.Tokyo Tech, MDX)

[18p-B3-9]

CeO₂-HfO₂-ZrO₂薄膜の格子間隔と強誘電性の評価

○下野園 航平¹、前川 芳輝¹、茶谷 那知¹、岡本 一輝¹、山岡 和希子²、川島 康²、井上 ゆか梨²、舟窪 浩¹ (1.東工大、2.TDK株式会社)

[18p-B3-10]

フラッシュランプアニールによるAl:HfO₂薄膜の結晶化

○三船 智哉¹、谷村 英昭^{1,2}、植野 雄守²、藤沢 浩訓¹、中嶋 誠二¹、大坂 藍¹、加藤 慎一²、三河 巧² (1. 兵庫県大工、2.SCREEN セミコンダクターソリューションズ)

[18p-B3-11]

機械学習ポテンシャルを用いたHfO₂結晶のモデリングの検討

○(D)糸矢 祐喜¹、小林 正治^{1,2} (1.東大生研、2.東大d.lab)

[18p-B3-12]

アモルファスHfO₂における酸素の拡散

○(M2)本図 優奈¹、仲村 龍介¹、鈴木 健之² (1.滋賀県大工、2.阪大産研)

強誘電体ゲート FET を用いた物理リザーバー計算における 分極状態と学習性能の関係

Relationship between polarization states and computational performance in physical reservoir computing using ferroelectric-gate FETs

阪公大工¹, 兵庫県大工², 東大工³ ○請関 優¹, 山田洋人¹, 藤村 紀文¹
横松 得滋², 神田 健介², 前中 一介², Kasidit Toprasertpong³, 高木信一³, 吉村 武¹
Osaka Metropolitan Univ.¹, University of Hyogo², The univ. of Tokyo³,
°Y. Ukezeki¹, H. Yamada¹, N. Fujimura¹, T. Yokomatsu², K. Kanda², K. Maenaka²,
K. Toprasertpong³, S. Takagi³, T. Yoshimura¹

E-mail: yoshimura@omu.ac.jp

【はじめに】人工知能の発展に伴い、ノイマンボトルネックは顕著な課題となりつつあり、高速かつ低消費電力な機械学習を可能にする物理リザーバーコンピューティング(PRC)が、革新的な計算システムとして期待されている[1]。演算を司るリザーバー層には、短期記憶性と非線形な応答を示す物理現象が用いられ、我々は集積回路との高い親和性を持つ強誘電体ゲート電界効果トランジスタ(FeFET)に注目している。既に $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ 薄膜を用いた FeFET において PRC の動作は実証され[2]、動作電圧の最適化によって学習性能が向上することも報告されている[3]。本研究では強誘電体薄膜の分極挙動と学習性能との関係性を詳細に調べることを目的として、電極面積の異なる metal-ferroelectric-metal (MFM) キャパシタを MOSFET のゲートへ接続することで metal-ferroelectric-metal-insulator-semiconductor (MFMISS) 構造の FeFET を構成し、特性評価を行った。

【実験方法と結果】ゲート絶縁膜の膜厚が約 10nm、チャネル幅が約 50 μm の N チャネル型 MOSFET に、膜厚が約 10nm の $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ を製膜した MFM キャパシタ[4]を接続することで FeFET を構成した。MFM キャパシタには、直径が約 10, 20, 30 μm の 3 種類の円電極を用いた。それぞれの電極を用いて -7~7V のゲート電圧を印加して測定した $I_{\text{DS}}\text{-}V_{\text{GS}}$ 静特性を Fig. 1 に示す。電極面積が小さくなるにつれ、強誘電体薄膜に印加される電圧が大きくなり、メモリウィンドウ(MW)は順に、0.4, 2.2, 3.6V と大きくなっている。用いた $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ 薄膜の抗電圧の 2 倍($2V_c$)は約 2.7V であるため、10 μm の電極を用いた時の MW は $2V_c$ を超えていることになる。この原因については講演内にて考察する。PRC における学習性能の評価のため、“1”, “0”のランダムな二進数ビット列を三角波の正負に対応付けてゲート電圧(V_{GS})として変換、FeFET へ入力しドレイン電流(I_{DS})を得た。測定した I_{DS} から入力履歴を読み取り、1-3 個前のビット値をそれぞれ出力できるように線形回帰により学習させた。その出力と目標の誤差の評価には、相関係数の 2 乗和を表すメモリキャパシティ(MC)を用いた。学習の結果、MC は電極面積が小さい方から順に 1.26, 1.31, 1.10 となった。学習性能の違いは生じたものの、大きな変化にはなっていない。FeFET のゲート構造では、強誘電体薄膜と酸化膜のキャパシタが直列に接続されているとみなせるが、強誘電体膜の実効静電容量は印加電界に依存するため、各薄膜に印加される電圧の比は単純な静電容量の逆比にはならない。講演では、強誘電体膜薄膜に実際に印加されている電界の大きさについて詳細に解析し、学習性能との関係について議論する。

【謝辞】本研究は、国立研究開発法人科学技術振興機構 (JST) 先端国際共同研究推進事業 (ASPIRE)、JPMJAP2312 の支援を受けたものである。

【参考文献】

- [1] G. Tanaka et al. Neural Networks 115, 100 (2019).
- [2] K. Toprasertpong et al. Commun. Eng. 1, 21 (2022).
- [3] S. Min et al. Jpn. J. Appl. Phys., 63, 03SP19 (2024).
- [4] K. Toprasertpong et al. Appl. Phys. Lett. 116, 242903 (2020).

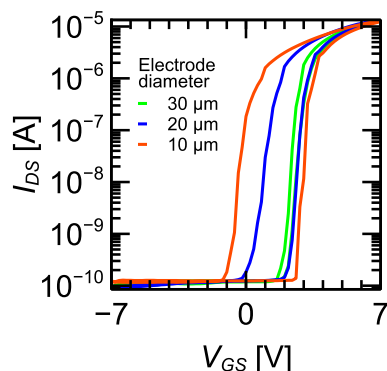


Fig. 1 $I_{\text{DS}}\text{-}V_{\text{GS}}$ static characteristics of FeFET with various electrode diameter

Imprint Behavior of Ferroelectric $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ Thin Film: Impact of Wake-up

[○] Zhenhong Liu, Zuocheng Cai, Mitsuru Takenaka, Shinichi Takagi and Kasidit Toprasertpong
The University of Tokyo, Faculty of Engineering.
E-mail: liuzh@mosfet.t.u-tokyo.ac.jp

1. Background: The HZO-based ferroelectric material is of significant interest in the nonvolatile memory field due to its robust ferroelectric properties even in ultra-thin films, and high compatibility with the Si CMOS platform^[1]. However, several reliability issues must be solved to meet the memory requirements, such as wake-up, fatigue, and imprint^[2-4]. Among them, wake-up and imprint potentially lead to a complicated operation scheme, a retention concern, and write failure; thus, understanding of these mechanisms is required to avoid such issues^[2]. In this work, the imprint is evaluated on capacitors with different wake-up histories, and evidence of their relationship is obtained.

2. Experiment: $\text{TiN}/\text{HZO}/\text{TiN}/\text{p}^+\text{-Si}$ MFM capacitors with different thicknesses of $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ were used in this work. Fig. 1(a) schematically shows the voltage waveform employed for imprint measurements. As depicted in Figs. 1(b) and (c), imprint significantly increases over time after a positive write pulse. This study focuses on the shift of the negative coercive field after positive writing ($|\Delta E_{c-}^{(+w)}|$) to evaluate the imprint. Fig. 2(a) illustrates the pulse sequence for measuring the relationship between wake-up and imprint. After applying specific cycles for wake-up, the voltage waveform in Fig. 1(a) was applied to evaluate the imprint.

3. Results and Discussion: As illustrated in Figs. 2(b), (c) and (d), with different HZO thicknesses (10, 8 and 6 nm), the imprint effect is suppressed with an increase in the wake-up cycles under the same holding time (t_h) conditions. To explain this experimental result, a deep understanding of the origin of imprint and wake-up is needed.

A recent research attributes wake-up to the movement of mobile particles such as oxygen atoms/ions or oxygen vacancies^[5]. To simplify, only oxygen vacancies are shown in Fig. 3. As depicted in Fig 3(a), in a pristine film, lots of oxygen vacancies are distributed near the interface between the metal and the ferroelectric (FE) film. During the wake-up cycling, mobile particles, including oxygen vacancies, distribute more uniformly within the FE film, as depicted in Fig 3(b). As a result, the domain can be de-pinned, and an increase in remanent polarization (P_r) can be observed (Fig. 2(e)).

We have shown^[6] that imprint is associated with charge injection/de-trapping due to electric field (E_i) across an interfacial layer between screen charges at the electrodes and bound charges in the FE film, as illustrated in Fig. 3(c). This model explains that due to E_i , charges could be injected from the electrode to the FE layer and accumulate at oxygen vacancies near the interface (or de-trap from oxygen vacancies near the opposite electrode). As a result, it leads to an asymmetrical distribution of charges (Fig. 3(d)), which form an addition field, and shift the P - E curve.

Based on this interpretation, a combination of imprint and wake-up effect models could give us a more comprehensive understanding of the relationship. During the wake-up cycling, oxygen atoms/ions or oxygen vacancies can move deep inside the FE film and the distribution becomes more uniform, which could decrease the sites to capture the injected charges or cause the charge de-trapping near the interface. As a result, the imprint could be weakened.

4. Conclusion: We have successfully observed and explained the impact of wake-up on the imprint behavior. This finding suggests the important role of the metal/FE interface quality in the reliability issues in HZO thin films.

Acknowledgments: This work was supported by JST-CREST (JPMJCR20C3) and JSPS KAKENHI (23K20951).

Reference: [1] M. Alam *et al.*, Appl. Phys. Lett. 114 (9), 090401 (2019). [2] P. Vishnumurthy *et al.*, IRPS, 7A.1 (2024). [3] K. Toprasertpong *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces 14, 51137 (2022) [4] S. Mueller *et al.*, IEEE Trans. Device Mat. Rel. 13(1), 93-97, (2013). [5] M. Pešić *et al.*, Advanced Functional Materials 26, 25 (2016) [6] Z. Liu *et al.*, JSAP Autumn Meeting, 22a-A201-9, (2023).

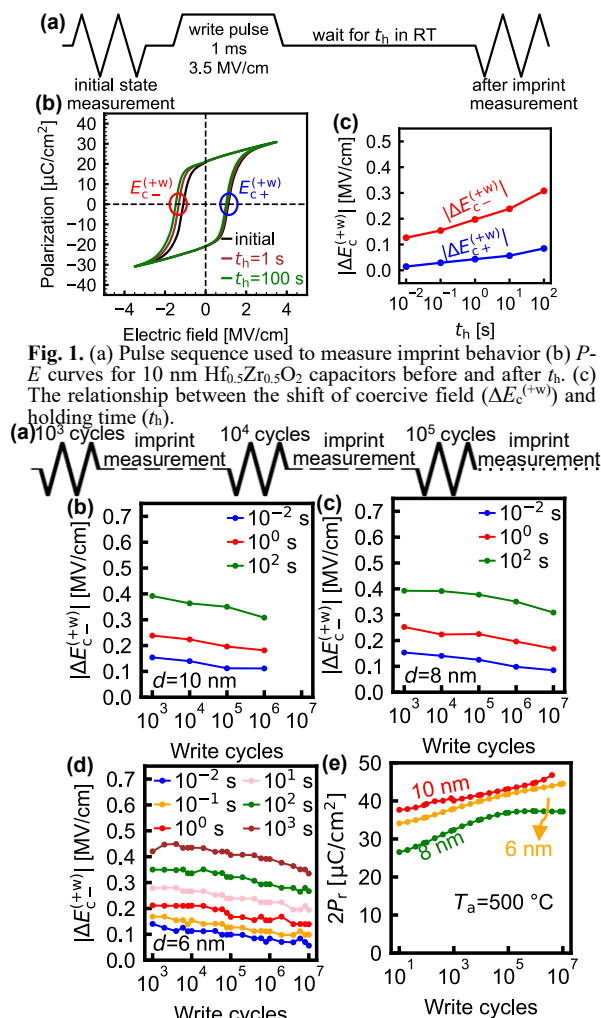


Fig. 1. (a) Pulse sequence used to measure imprint behavior (b) P - E curves for 10 nm $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ capacitors before and after t_h . (c) The relationship between the shift of coercive field ($\Delta E_{c-}^{(+w)}$) and holding time (t_h).

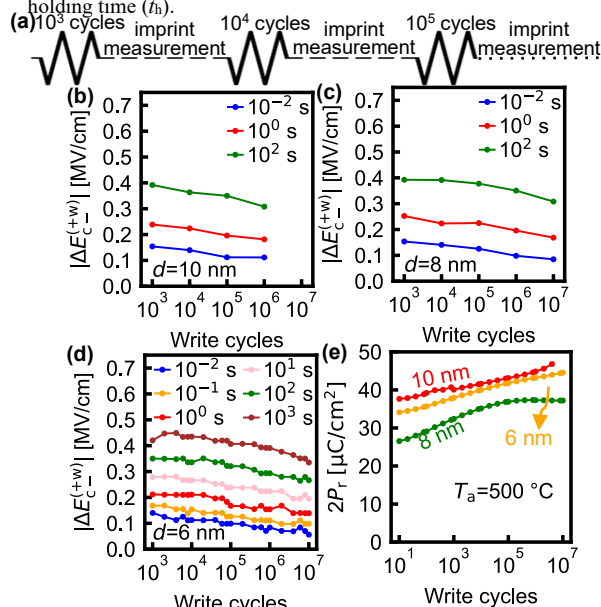


Fig. 2. (a) Pulse sequence used to measure the relationship between wake-up and imprint. The relationship between $|\Delta E_{c-}^{(+w)}|$ and write cycles after various t_h in different HZO film thicknesses ($d =$ (b) 10 nm, (c) 8 nm, and (d) 6 nm) devices. All samples were annealed at 500 °C for 30 s. (e) The relationship between write cycles and the $2P_r$ value in the device with different thicknesses.

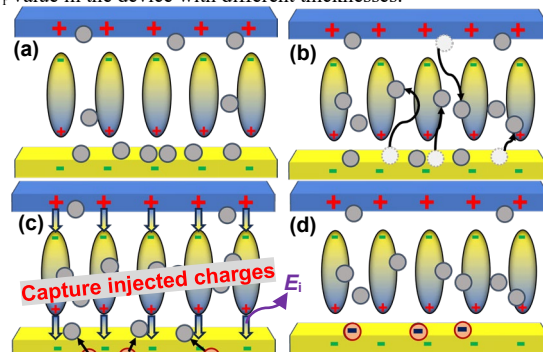


Fig. 3. Schematic describing oxygen vacancies redistribution and charge injection. (a) Before cycling, oxygen vacancies are distributed near the interfaces (b) Oxygen vacancies could distribute more uniformly within the whole HZO bulk due to the field cycling. (c) During the holding time, charges were injected from the electrode into the FE film and captured by the oxygen vacancies. (d) After cycling, fewer oxygen vacancies accumulate in the interface, resulting in less charge capturing and weaker imprint.

HZO 強誘電体キャパシタにおける wake-up 特性の周波数・温度依存性と物理機構の考察

Frequency and temperature dependence of wake-up characteristics and physical mechanisms in HZO ferroelectric capacitors

東大院工 ○伊藤 広恭, 田原 建人, 川野 真琴, 竹中 充, 高木 信一, トプ・サート・ポン カディット
K. Ito, K. Tahara, M. Kawano, M. Takenaka, S. Takagi, K. Toprasertpong

(The Univ. of Tokyo, School of Engineering)

E-mail: ito@mosfet.t.u-tokyo.ac.jp

【背景】HfO₂系強誘電体は、薄膜化が可能であり、CMOS との親和性もよいことから、近年非常に注目されている [1]。一方、主に薄膜において、強誘電性を発現させるには電界サイクリングが必要になるという wake-up 効果が課題となっている[2]。wake-up の原理として、相転移やドメインの de-pinning といった説が有力であるが[3]、実験的な検証はなされていない。本研究ではHf_{0.5}Zr_{0.5}O₂(HZO)を用いた強誘電キャパシタにおける wake-up 特性の周波数・温度依存性を測定し、その物理機構の考察を行った。

【実験手法】TiN/HZO(4.0 nm)/TiN の極薄膜 MFM キャパシタ[2]の wake-up 特性を評価した。ここで電界サイクリングは矩形波で行い、分極特性は 10 kHz 三角波で評価し、温度は両方の手順で統一した。周波数依存性の測定では、サイクリング周波数を 0.1 Hz から 100 kHz まで変化させて、温度条件は 100°Cで行った。温度依存性の測定は 0°C と 100°C において周波数 10 kHz と総時間 100 s でサイクリングを行った。電界の大きさは 4 MV/cm で統一した。

【結果・考察】Fig. 1 に周波数依存性の測定結果を示す。Fig. 1(a)はサイクル数に対する残留分極量 2P_rの変化を示している。サイクル数が増えると 2P_rも増加する傾向が確認できる。一方、各周波数で 2P_r-cycle 特性が異なることから、wake-up はサイクル数だけで決定されないといえる。そこで、ストレス時間というパラメータを導入する。これはサイクリングの総時間を表しており、例えば 1 kHz で 1 s のストレス時間では 10³ サイクルとなる。Fig. 1(b)は測定結果を、周波数と 2P_rの関係として各ストレス時間ごとにプロットした図である。同ストレス時間でみると、各周波数で 2P_rが異なり、wake-up はストレス時間のみでも決定されないといえる。一方、特定の周波数において 2P_rがピークをとることが確認できる。先行研究では、強誘電体膜中のイオンの臨界周波数は約 1 kHz と述べられており[4]、100 s の結果でピークをとる周波数と一致する。次に温度依存性の測定結果を Fig. 2 に示す。wake-up は高温ほど促進されていることから、イオンのドリフト・拡散が wake-up に関与していると考えられる。以上の結果から、wake-up の物理機構を考察する。イオンのドリフト距離はサイクリングの半周期に比例すると考えられ、すなわち高周波数ではイオンの通過領域が限定されるため、膜の一部分しか wake-up されない。一方、低周波数で

はイオンは半周期で膜全体を移動するが、界面到達から電界の向きが切り替わるまでのタイムラグが大きくなると、時間当たりの wake-up 効率が悪くなってしまうと思われる。半周期でちょうど膜全体を移動する周波数が最も効率よく wake-up が行われ、これが 2P_rのピークとして表れたと考えられる。また、特に高温においてはイオンの動きが活発になり、ある領域を通過する確率が上がることで、wake-up が進みやすくなると考えられる。このような wake-up のモデル(Fig. 3)を考えると、周波数・温度依存性をよく説明できる。

【結論】HZO の wake-up 特性の周波数・温度依存性から、膜内を移動するイオンが wake-up に関与していることが示唆された。また、測定結果からイオンの挙動を考察し、wake-up のモデルを提案した。

【謝辞】本研究は、JST-CREST(JPMJCR20C3)、JSPS 科研費 (23K20951)の支援を受けて実施された。

【参考文献】[1] J. Müller et al., *ECS J. Solid State Sci. Technol.* 4, N30 (2015) [2] K. Toprasertpong et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 14, 51137 (2022) [3] M. Pešić et al., *Adv. Funct. Mater.* 26, 4601 (2016) [4] 川野他、*春応物* 16p-B508-6 (2023)

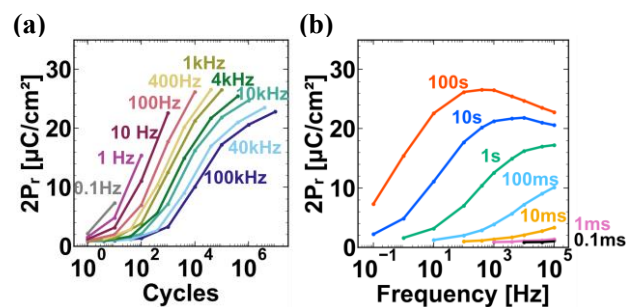


Fig. 1 Frequency dependence of wake-up.

(a) 2P_r-cycle plot at given frequency and
(b) 2P_r-frequency plot at given stress time.

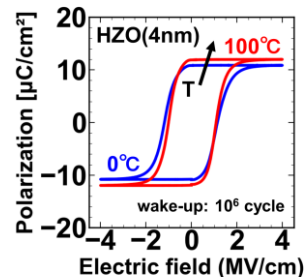


Fig. 2 Temperature dependence of wake-up characteristics.

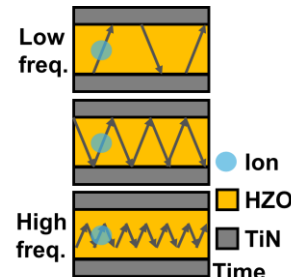


Fig. 3 Wake-up model.

Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ MFM キャパシタに対する最初の電界印加時における 欠陥生成と強誘電性の相関

Correlative Behavior between Defect Generation and Ferroelectricity in First Application of
Electric field to Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ MFM capacitors

産総研 先端半導体研究センター ○森田 行則, 浅沼 周太郎, 太田 裕之, 右田 真司

SFRC, AIST, °Yukinori Morita, Shutaro Asanuma, Hiroyuki Ota, Shinji Migita

E-mail: y.morita@aist.go.jp

[概要] 強誘電性 Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ (HZO)を用いた Metal-Ferroelectric-Metal (MFM)キャパシタに対し、最初の電界印加によって、HZO 中に欠陥が生成され、電気的特性が変化することを報告してきた[1,2]。この電界印加過程において、印加電圧と電気的特性の変化を詳細に検証することで、欠陥生成と HZO 膜の強誘電性との関連を調査した。

[実験] 試料の作成は以降の手順による。n+Si 基板上に DC スパッタ法により TaN 下部電極を形成し、その上に RF スパッタ法により 30 nm の HZO 層を堆積、さらに 10 nm の TaN 上部電極を形成し、860°C の Rapid Thermal Annealing による熱処理を行った。その後、リソグラフィと RIE により電極加工し、Metal-Ferroelectric-Metal (MFM)キャパシタを形成した。

[結果と考察] 残留分極—電圧 (PV)測定を行い、この手法で作製した MFM キャパシタが強誘電性を示すことを確認した。これ以降の計測は、ポーリング三角波を印加せず、最初の電界印加における電気的特性に着目した。Fig. 1 は MFM キャパシタに対し、スイープ電圧幅を 0.1 V づつ増加させて連続測定した電流—電圧 (I-V) 測定結果である。1 回の電圧スイープサイクルで、反時計回りにヒステリシスが発生する。スイープ幅を増加させると、電圧増加時の I-V 特性は直前のスイープサイクルでの電圧減少時の I-V とほぼ一致している。スイープ幅が 1.6 V 以上では、電圧増加時と減少時の I-V にはヒステリシスは見られなくなる。Fig. 2 は Fig.1 の I-V 測定結果を PF プロットに変換し、1 つのグラフに重ね書きしたものである[3]。PF プロットは、キャリアの伝導が膜中のトラップを介して発生すると仮定したモデルに基づく。トラップを介した電流は PF プロットで直線的な依存性で示され、その直線の切片はトラップ密度に対応する。Fig.2 から、電圧スイープ幅の増加に従い、破線の切片が増加していることから、電界強度に依存したトラップの増加が示唆される。電圧スイープ幅の増加に伴い、PV 特性の残留分極値の増大も観察された。

[謝辞] 本研究の一部は JSPS 科研費 20H00240、20H02445、および JST 日本—台湾研究交流事業 JPMJKB1903 の支援により実施された。

[参考文献] [1] Y. Morita, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 61 (2022) SC1070. [2] Y. Morita, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 63 (2024) 04SP53. [3] J. Frenkel, Phys. Rev. 54 (1938) 647.

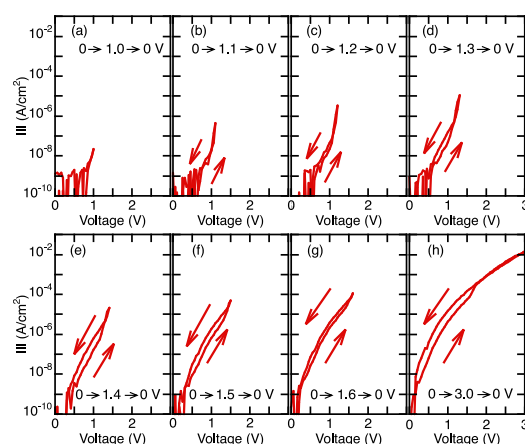


Fig. 1 (a)-(h) Sequential I-V of the MFM capacitor.

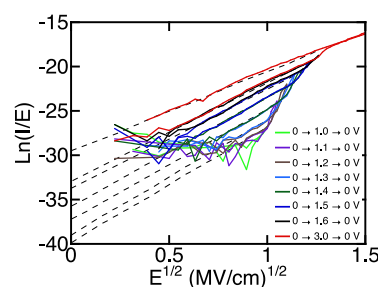


Fig. 2 PF plot transformed from I-Vs in Fig. 1. Dashed lines are fitted to the I/E characteristics of each voltage sweep ranges.

強誘電性 HfO₂ キャパシタにおける極薄膜下での強誘電性の消失

Ferroelectricity disappearance in ultra-thin HfO₂ capacitor

自由業¹, 産総研² °鳥海 明¹, 右田 真司²

Free Engineer¹, AIST², °Akira Toriumi¹, Shinji Migita²

e-mail: atoriumi3@gmail.com

P_r と E_c は強誘電体材料特性を特徴づける物理量であり, その膜厚効果に着目してきた[1]. E_c に関する膜厚依存性に関してここ数年の応物講演会で発表してきたが今回は P_r の膜厚依存性に注目して考察する. 我々が取得してきたデータに加えて論文や学会で報告されている P_r の値を読み取り膜厚に対してプロットした (Fig.1). ほとんど場合に膜厚が 5~10 nm のところでピークを持ち 3 nm 以下で急峻に消失する.

MFM キャパシタにおける P_r は面積あたりの値であるので膜中の強誘電性領域の割合がプロセスによってばらついていることを考えると P_r がばらつくのは当然であろう. とところが 5nm 以下では P_r が極めて “シャープに減少し消失” する. 薄膜では電極の影響を強く受け準安定相が不安定相に変質している, 応力が働いてる, あるいはそもそも熱力学的に HfO₂ の平衡状態図が表面エネルギーを考慮することで変化しているなどともっともらしいこともたくさん考えられるが, これらはプロセスによって程度が異なることを考えると上記の考え方だけでは理解するのが難しい. 以下では異なる観点から考えてみる.

現実的な金属電極 M では $10^{23}/\text{cm}^3$ 程度の自由電子を含んでおり, 一方 HfO₂ の $P_r = 16 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ とすると電極界面の screening 電荷 P_{scr} は $10^{14}\text{C}/\text{cm}^2$ という表面電荷量に対応するので電極中の電子分布に少なからぬ影響を与え, 電荷分布は Fig. 2 のようにキャパシタモデルで考えることができるであろう.

$$\begin{cases} q_{IL} = q_{IR} (> 0) \quad , \quad P_{scr} + q_{Fe} - q_{IL} (= q_{IR}) = 0, \\ \frac{q_{IL}}{C_{IL}} + \frac{q_{Fe}}{C_{Fe}} + \frac{q_{IR}}{C_{IR}} = V. \end{cases}$$

つまり P を遮蔽するために生じた P_{scr} による金属電極内の電荷応答によって強誘電体膜に P とは逆向き電界が印加され, その電界は下記のように書くことができる ($V=0$ の場合).

$$E_{Fe}(V=0) = -\frac{1}{\epsilon_0 d_{Fe}} \cdot \frac{P_{scr}}{\frac{\epsilon_M}{2\lambda_M} + \frac{\epsilon_{Fe}}{d_{Fe}}}.$$

ここでは両電極は同じ金属

とし, 比誘電率 ϵ_M と λ_M を Thomas-Fermi 近似に基づいて計算した. Fig. 3 が示すように $V=0$ の時にすでに数 nm の HfO₂ には E_c と同等な 1 MV/cm を超える逆向き電界が印加されている. その厚さ以下では, “膜は強誘電性を持つが MFM 構造では本質的に強誘電性は消失してしまう” ことになる. このことは従来の強誘電体に対しても “critical thickness” として長く議論されてきたことであるが[2], HfO₂ の場合はその誘電率があまり高くないことから分母第 2 項が小さくなり $E_{Fe}(V=0)$ を無視できない. ここでは $\epsilon_M=5$ を用いたが, これは自由電子による誘電率ではなく母体となる金属のイオン芯の部分からの寄与ということになっている [3].

3 nm 以下における P_r のシャープな低下と消失は上記のような本質的な効果がメインに効いているのではないだろうか.

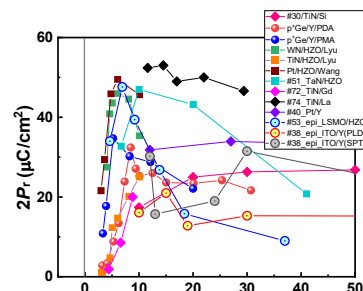


Fig. 1. 強誘電体 HfO₂ キャパシタにおける $2P_r$ の膜厚依存性 (文献報告値)

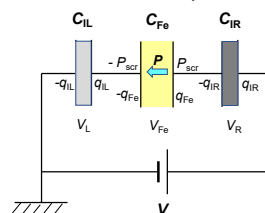


Fig. 2. MFM キャパシタの等価回路

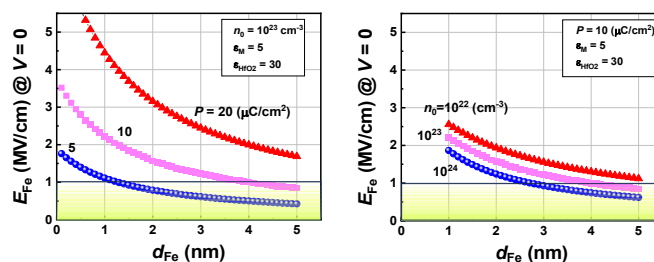


Fig. 3. $V=0$ における HfO₂ に印加される電界. $E_{Fe} > 1\text{MV}/\text{cm}$ で残留分極の消失.

[1] Tian, APL **112**, 102902. [2] Mehta, JAP **44**, 3379 (1973). [3] Black, TED **46**,776(1999).

強誘電性 HfO_2 の分極反転時間からみた分極反転機構の考察

A view of polarization switching kinetics from polarization switching time in ferroelectric HfO_2

自由業¹, 産総研², °鳥海 明¹, 右田 真司²

Free Engineer¹, AIST², °Akira Toriumi¹, Shinji Migita²

e-mail: atoriumi3@gmail.com

強誘電性 HfO_2 に関する報告は山のようにあるが、その分極反転機構に関して論じているものは意外と少ない。いわゆる nucleation-limited model (NLS) に基づく解析から当然のようにスタートする。その場合も JKD 則[1]に基づき Tagantsev model [2]による解析を行うという矛盾を内包していることも多い。KAI model と NLS model が従来の強誘電体にあまりにもうまく適用されてきたことから HfO_2 の場合もこの線で考えるのも当然である。しかし Tagantsev model では分極反転の素過程は何でも可能であり (NLS という呼び方はともかくとして)、もう少し個々の特徴を捉える必要がある。

HfO_2 の分極反転実験は自分たちで行ってこなかったもので例によって文献からデータ抽出した。測定はすべてダブルパルス法で行われており、分極反転時間として分極が 50% 反転した時間を t_{sw} と定義した。文献は多くはないが電界依存性を含み実験結果から t_{sw}^{-1} と E_{ox} の関係を Fig. 1 に示す。電界を強くすれば t_{sw} は当然短くなるが多くの場合において 10^{-7} 秒くらいに収束しており、これは測定系からの外部回路の寄生効果としての RC が効いているとされる。RC の中の C には強誘電性膜の C も考えなくてはいけないのでナノ秒スイッチングを狙うような時にはサンプルの容量は軽くする必要がある。最近の高速スイッチングを示した結果はサイズを工夫して非常に高電界下で 10^{-9} 秒という結果も報告されている [3]。

ここで考え方を変えて、本講演では電界が低いところで分極がどのように反転するのかに注目する。Fig. 2 のように t_{sw}^{-1} と E_{ox} の関係をリニアスケールでプロットしてみた。電界が弱いときには当然 t_{sw} は長くなり t_{sw}^{-1} はゼロに近づく。 t_{sw}^{-1} が 0 から立ち上がっていくところでは寄生効果はほとんど関係なくなり分極反転機構のみを反映するはずである。ここで注目したいのは、 $t_{\text{sw}}^{-1}=0$ と交差する E_{ox} が $1 \sim 2 \text{ MV/cm}$ という E_c 近辺にくるという点である。この結果は Landau Switching (LS) の場合には当然であり[4]、少なくとも E_c 付近の低電界領域における分極反転は LS によって支配されていることを示唆するのではないだろうか (もちろんサンプル様の LS ではなく微小 LS セグメントの複合体と考える) [5]。電界が高くなると domain growth mode に変化していく (あるいはミックスしていく) 可能性の議論も興味深い。

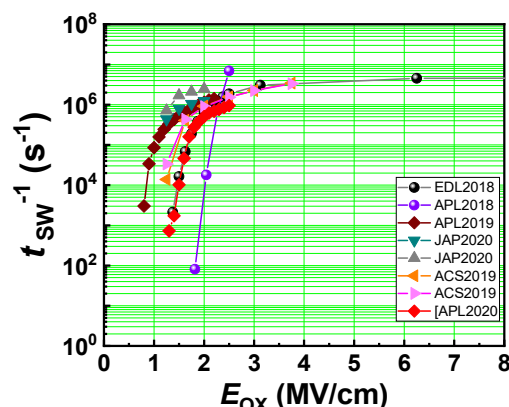


Fig. 1. 分極反転時間と印加電界の関係

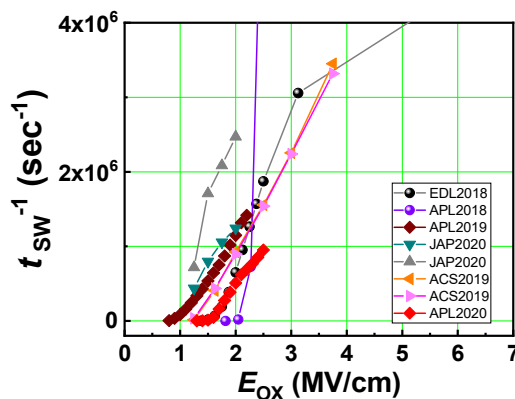


Fig. 2. 分極反転時間と印加電界の関係 (Fig. 1 と同じデータであるがプロットの仕方を変更)

[1] Kay&Dunn, Philos. Mag. 7, 2027 (1962). [2] Tagantsev, PRB 66, 214109 (2002). [3] Lyu, IEDM, 342 (2019). [4] 本講演会 (2022 春, 青学). [5] 本講演会 (2024 春, 都市大).

AlN 微粒子を均一に添加した多層 $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ 薄膜の強誘電体特性の評価 Evaluation of ferroelectric properties on multilayer $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ thin films with uniformly doped AlN nanocluster

ルネサスエレクトロニクス株式会社 [○]高野 貴裕, 山口 直, 大森和幸, 村中 誠志
Renesas Electronics Corporation, [○]Takahiro Kono, Tadashi Yamaguchi, Kazuyuki Omori,
Seiji Muranaka,
e-mail:takahiro.kono.vj@renesas.com

【はじめに】

近年、 HfO_2 系の強誘電体薄膜は、CMOS 製造プロセスとの親和性が高く、低電圧で動作可能な不揮発性メモリ素子材料として高い注目を集めている。先行研究において、 $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ (HZO) 膜中へ Al や Si の微量添加により FeFET の信頼性や特性バラツキが改善することを報告している[1-3]。一方、デバイスのスケールングに対して、強誘電体膜の薄膜化による残留分極の低下が課題である。今回、HZO 膜中の添加量をより精密に制御できる窒化アルミニウム(AlN)微粒子を導入して 6nm の HZO 膜を試作し、AlN の添加量および添加回数に対する残留分極および書き換え耐性を調べた。

【実験】

図 1 に、MFM キャパシタの試作フローを示す。素子分離(STI)した P+/P 型 Si 基板表面に 5nm の TiN を成膜した後、ALD 法にて非晶質 HZO 膜の堆積と AlN の微量添加を繰り返して 6nm の HZO 膜を形成した。本実験では、1 サイクルあたりの HZO 膜の膜厚を 0.8nm、1.5nm および 3nm として AlN を添加した試料(HZO 8 層、4 層、2 層)を準備した。また、1 回あたりの AlN の添加量は $2.5 \times 10^{12} \sim 1 \times 10^{13} \text{ atoms/cm}^2$ として、総添加量を $1 \times 10^{13} \sim 7 \times 10^{13} \text{ atoms/cm}^2$ とした。上部電極として 5nm の TiN を成膜した後、 N_2 雰囲気中で 500°C 、10 秒にて HZO 膜を結晶化した。最後に α -Si を成膜し、B 注入および活性化アニール後に電極をパターニングして Poly-Si/TiN/HZO/TiN/Si キャパシタを作製した。

【結果と考察】

図 2 に、AlN の総添加量に対する残留分極(2Pr)を示す。AlN の添加量が少ないほど残留分極が大きい。また、1 サイクルあたりの HZO 膜の膜厚が薄いほど残留分極が大きい。図 3 に、AlN の総添加量が HZO 2 層で $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ および HZO 8 層で $1.75 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ である HZO 膜に $\pm 3 \text{ MV/cm}$ を印加した際の書換回数に対する Pr の変化(エンデュランス)を示す。1 サイクルあたり 3nm で成膜した HZO 2 層に対して、1 サイクルあたり 0.8nm で成膜した HZO 8 層は初期 Pr も大きく、100k 回後の疲労劣化も小さい。添加する HZO 膜の層数を増やすことで AlN による結晶性改善効果が膜中で均一に広がり、書き換え耐性が良くなったと考えられる。

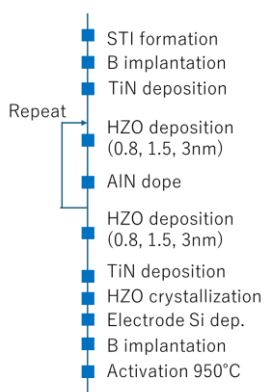


Fig. 1. Fabrication flow of MFM capacitor

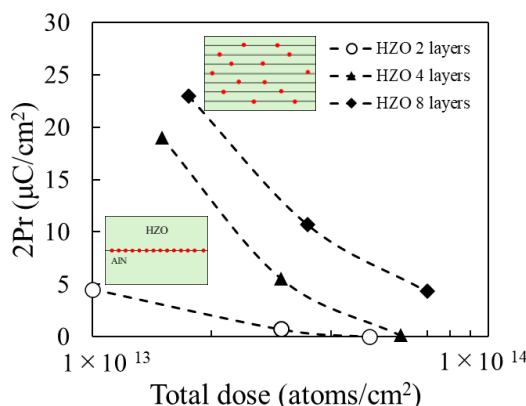


Fig. 2. Remanent polarization of HZO films as a function of AlN dose

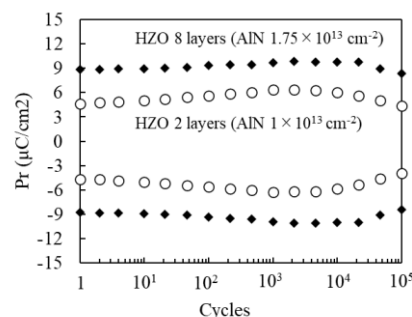


Fig. 3. Endurance characteristics of multilayer HZO film

References

- [1] T. Yamaguchi, et. al., IEDM 2018, p. 165.
- [2] K. Maekawa, et. al., IEDM 2019, p. 350.
- [3] T. Ohara, et. al., SSDM 2019, p. 577

Electric-optic properties of $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ thin films on (La, Sr) $\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(100)$

Nagoya Univ.¹, Kyoto Univ.², Tokyo Tech. MDX³,
Afeefa Dastgir¹, Xueyou Yuan¹, Yufan Shen², Daisuke Kan², Yuichi Shimakawa²,
Tomoaki Yamada^{1,3}

E-mail: t-yamada@energy.nagoya-u.ac.jp

Ferroelectricity in HfO_2 -based thin films is attractive for applications in ferroelectric random-access memory and ferroelectric tunnelling junctions. We recently found that the Y-doped HfO_2 thin films exhibit the linear electro-optic (EO) property. Although the observed EO coefficient was below 1 pm/V, which is one or two order magnitudes smaller than that of conventional ferroelectric EO materials, it is interesting for the Si-integrated photonics as HfO_2 is highly compatible with CMOS process. Therefore, the enhancement of EO coefficient in HfO_2 -based thin films can be expected.

In this study, we investigated the thickness-dependence of EO property in $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ (HZO) thin films, revealing an enhanced EO response in 10 nm-thick films compared to thicker films. HZO films were deposited on (La, Sr) $\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(100)$ [1] using pulsed laser deposition, with the thickness in the range of 3 to 30 nm. As can be seen in Fig. 1, there is a partial phase transition from ferroelectric orthorhombic to paraelectric monoclinic with increasing film thickness from 10 nm to 30 nm, meaning that both orthorhombic and monoclinic phases coexist in the 30 nm-thick film. The EO response of those films was characterized using in-house modulation ellipsometry [2]. It was found that both 10 nm and 30 nm films exhibited evident linear EO response, and the EO coefficient for the 10 nm-thick film was 1.0 pm/V, which was larger than that for 30 nm-thick film (0.8 pm/V). This implies that the larger volume fraction of ferroelectric orthorhombic phase in thinner films contributed to the larger EO response.

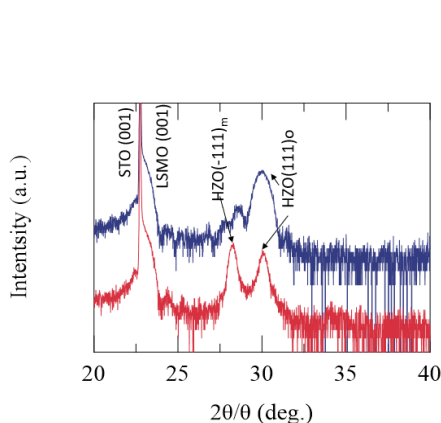


Fig. 1: XRD 2θ scan-spectra for 10nm (blue) and 30nm (red)-thick HZO films on LSMO/STO (001)

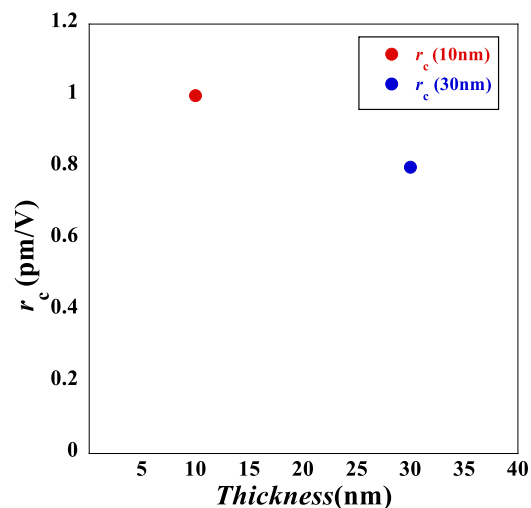


Fig. 2: EO coefficient r_c , for 10nm and 30nm-thick HZO films on LSMO/STO (001)

References:

- [1] Y. Shen, K. Ooe, X. Yuan, T. Yamada, S. Kobayashi, M. Haruta, D. Kan, and Y. Shimakawa, *Nat. Commun.* (in press).
- [2] S. Kondo, T. Yamada, A. K. Tagantsev, P. Ma, J. Leuthold, P. Martelli, P. Boffi, M. Martinelli, M. Yoshino, and T. Nagasaki, *Appl. Phys. Lett.*, **115**, 092901 (2019).

CeO₂-HfO₂-ZrO₂ 薄膜の格子間隔と強誘電性の評価

Lattice spacing and ferroelectric properties of CeO₂-HfO₂-ZrO₂ thin films

(東京工業大学¹, TDK 株式会社²)[○](M2) 下野園 航平¹, 前川 芳輝¹, 茶谷 那知¹, 岡本 一輝¹

山岡 和希子², 川島 康², 井上 ゆか梨², 舟窪 浩¹

Tokyo Tech.¹, TDK Corp.², [○]K. Shimonosono¹, Y. Maekawa¹, N. Chaya¹, K. Okamoto¹

Y. Inoue², W.Yamaoka², Y.Kawashima² H. Funakubo¹

E-mail: shimonosono.k.aa@m.titech.ac.jp

【緒言】HfO₂ 基強誘電体は、2011 年に強誘電性が報告され^[1]、CMOS プロセスとの高い整合性や微細加工の容易さから高集積可能な新たな強誘電体材料としての注目が集まっている。HfO₂ 基強誘電体は HfO₂-ZrO₂ や YO_{1.5}-HfO₂ をはじめとする様々な組成系で強誘電体薄膜作製の報告例がある^{[2],[3]}。特に、CeO₂-HfO₂ は広い Ce/(Ce+Hf) で強誘電性を示し、報告されている HfO₂ 基強誘電体の中で平均イオン半径が最大であることが報告されている^[4]。一方、YO_{1.5}-HfO₂-ZrO₂ では Zr/(Hf+Zr) の増加に伴い強誘電性を示す Y/(Y+Hf+Zr) が減少することも報告されている^[5]。今回はすべての母材料が蛍石構造を有する酸化物で構成される CeO₂-HfO₂-ZrO₂ 薄膜を作製し、その格子面間隔と強誘電性の評価を行った。

【実験方法】試料は、ターゲットとして CeO₂-HfO₂-ZrO₂ の焼結体を用い、(111)ITO(SnO₂ 添加 In₂O₃)/(111)YSZ(イットリア安定化ジルコニア)基板上に KrF エキシマレーザーを用いたパルスレーザー堆積法にて室温で作製した。成膜後、窒素雰囲気にて 1000°C×10 min の条件で熱処理を行った。作製した薄膜の結晶相および電気特性評価はそれぞれ、X 線回折(XRD)測定および分極-電界(P-E)測定により行った。

【結果と考察】得られた膜はすべて{111}配向したエピタキシャル膜であることを確認した。また、分極-電界(P-E)測定によって強誘電性を示す Ce/(Ce+Hf+Zr)は Zr/(Hf+Zr)の増加に伴って減少し、先行研究と同様の傾向が確認された。Fig. 1(a)に Ce/(Ce+Hf+Zr)に対する直方晶相の d_{110} の変化を示す。直方晶相の d_{110} は Ce/(Ce+Hf+Zr)=0.01~0.17 の間で線形に変化することが確認された。Fig.1(b)に本研究で作製した CeO₂-HfO₂-ZrO₂ 薄膜と先行研究である YO_{1.5}-HfO₂-ZrO₂ 薄膜における直方晶相の d_{110} に対する P_r の変化を示す。CeO₂-HfO₂-ZrO₂ 薄膜では Zr/(Hf+Zr)の増加で直方晶相の d_{110} を低い組成領域へ拡張できていることが確認された。また、CeO₂-HfO₂-ZrO₂ 薄膜では YO_{1.5}-HfO₂-ZrO₂ 薄膜と比較して広い直方晶相の d_{110} で強誘電性が発現することを確認した。

【参考文献】[1] T. S. Böscke *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **99**, 102903 (2011). [2] J. Müller *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **99**, 112901 (2011). [3] J. Müller *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **110**, 114113 (2011). [4] K. Hirai *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **61**, SN1019 (2022). [5] T. Mimura *et al.*, *ACS Appl. Electron Mater.*, **5**, 1600, (2023).

【謝辞】本研究の一部は、科研費(21H01617, 22K18307, 23K13364)および文部科学省の次世代 X-nics 半導体創生拠点形成事業 (JPJ011438) およびデータ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業 (JPMXP1122683430) の助成を受けたものです。本研究は、JST 先端国際共同研究推進事業 (ASPIRE)、JPMJAP2312 の支援を受けたものです。

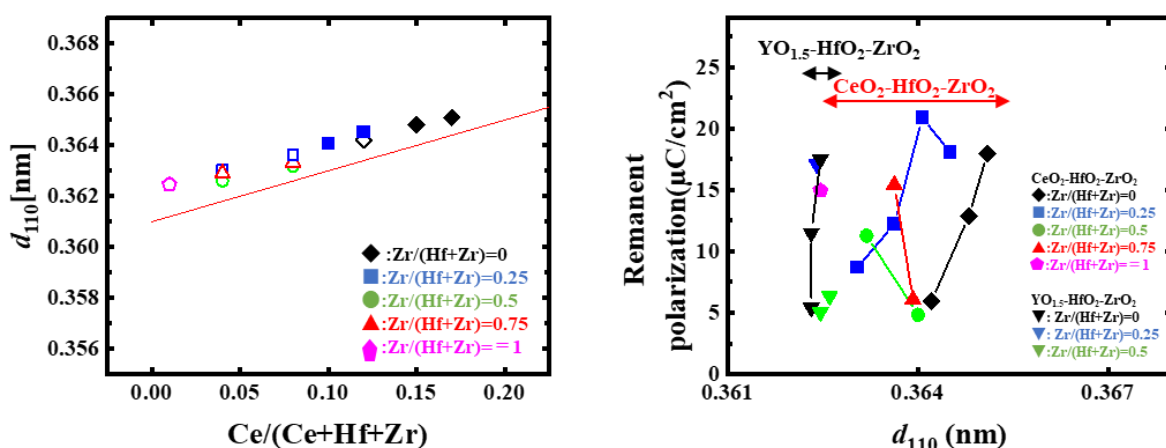


Figure 1(a) 110 lattice spacing of orthorhombic phase, d_{110} , as a function of Ce/(Ce+Hf+Zr) ratio in CeO₂-HfO₂-ZrO₂ films. Closed symbols are orthorhombic phases. Open symbols are a mixture of monoclinic phase and orthorhombic phase(b) Remanent polarization (P_r) as a function of d_{110} . Data of CeO₂-HfO₂-ZrO₂ films and YO_{1.5}-HfO₂-ZrO₂ films are shown.

フラッシュランプアニールによる Al:HfO₂ 薄膜の結晶化

Crystallization of Al:HfO₂ Thin Films by Flash Lamp Annealing

○三船 智哉¹, 谷村 英昭^{1,2}, 植野 雄守², 藤沢 浩訓¹, 中嶋 誠二¹, 大坂 藍¹,
加藤 慎一², 三河 巧²

兵庫県立大学¹ 株式会社 SCREEN セミコンダクターソリューションズ²

○T. Mifune¹, H. Tanimura^{1,2}, Y. Ueno², H. Fujisawa¹, S. Nakashima¹, Ai I. Osaka¹,
S. Kato², and T. Mikawa²

University of Hyogo¹ SCREEN Semiconductor Solutions Co., Ltd.²

E-mail: ei24i023@guh.u-hyogo.ac.jp

【序論】我々はフラッシュランプアニール(FLA)を用いて, Al (6%):HfO₂(HAO)薄膜の結晶化に取り組んできた¹⁾. 既に FLA は直方晶の形成を促進し, 2Pr を向上させるなど, HAO 薄膜の結晶化に適した熱処理法であることを示した. HAO 薄膜の 2Pr は Al 組成(=Hf/(Hf+Al))に依存し, RTA では Al 組成 2%付近で, 最大 40 μ C/cm² が報告されている²⁾. 本研究では FLA 処理により, Al 組成 2%の HAO 薄膜において 50 μ C/cm² を超える大きな 2Pr を得たので報告する.

【実験】Si 基板上に TiN/HAO/TiN 構造のキャパシタを作製した. HAO 薄膜の膜厚は 10nm とし, Al 組成は 2%とした. 400 $^{\circ}$ Cに予熱された試料を, 800~1000 $^{\circ}$ C, 5ms で FLA 処理した. 比較として 400~800 $^{\circ}$ C, 1min の RTA 処理も行った. なお, FLA, RTA とともに N₂ 雰囲気中で処理した. 結晶性と強誘電性をそれぞれ GIXRD と P-E 測定により評価した.

【結果と考察】Fig. 1 に, 熱処理前後の HAO 薄膜の XRD パターンを示す. 熱処理後は, 30.5 $^{\circ}$ および 35.8 $^{\circ}$ 付近にピークが現れた. それぞれ直方晶/正方晶および直方晶/単斜晶 HAO に対応し, FLA および RTA により HAO が結晶化したことが分かる. Fig. 1(b)に, バックグラウンドを除去した 30.5 $^{\circ}$ 付近の HAO ピークの拡大図を示す. FLA 処理により, RTA 比でピーク強度が約 55%増加した. 2Pr は FLA で 56.3 μ C/cm², RTA で 25.3 μ C/cm²であることを踏まえると, 直方晶の形成割合が増えたことによるピーク強度の増大と考えられる. また, 回折角は, FLA では 30.77 $^{\circ}$

と, RTA の 30.65 $^{\circ}$ よりも高角側にシフトしており, HAO 薄膜には引張応力が残留していることが分かった. 低熱履歴の FLA 処理では, TiN 電極の圧縮応力が緩和されず残っていることが分かっており¹⁾, HAO 薄膜に引張応力が印加されることが高角側へのシフトを誘起し, 直方晶の形成が促進され, 分極特性を向上させたと考えられる.

【参考文献】

- 1) 植野 雄守 他, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 25p-1BJ-4, 2024.
- 2) M. H. Park et al., in *Ferroelectricity in Doped Hafnium Oxide*, Eds. U. Schroeder et al. (Woodhead Publishing, 2019) pp. 49-74.

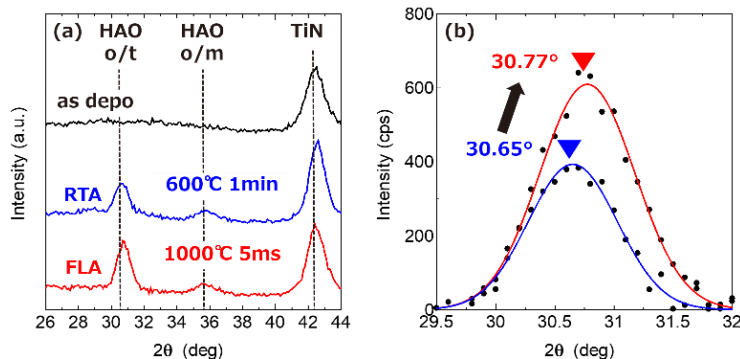


Fig.1 (a) GIXRD patterns of HAO (2%) films annealed by FLA and RTA and (b) HAO peaks around 30.5 $^{\circ}$.

機械学習ポテンシャルを用いた HfO_2 結晶のモデリングの検討 Investigation of modeling HfO_2 crystals using machine learning potentials

東大生産研¹, 東大 d.lab²

°(D2)糸矢 祐喜¹, 小林 正治^{1,2}

The Univ. Tokyo, °Yuki Itoya, and Masaharu Kobayashi

E-mail: itoya@nano.iis.u-tokyo.ac.jp

背景と目的: HfO_2 系強誘電体(FE-HfO_2)は、CMOS の微細化プロセスとの整合性から高密度かつ低消費電力なメモリを実現する材料として期待されている。これまでに第一原理計算を用いた HfO_2 のモデリングにより結晶相の安定性とドーパ元素の関係や配向の関係が示されてきた[1-3]。 HfO_2 系強誘電体は多結晶での実用化が想定されており、結晶の大きさは 10~20 nm 程度とされている。そのような大きい系では通常の第一原理計算では計算量が多く計算が困難である。そこで、計算負荷の高いポテンシャル計算部分を機械学習により作成したエネルギーポテンシャル面(MLPs)に置き換えることで計算負荷を低減する手法が提案されている。本研究では、機械学習ポテンシャル手法として Pickard らが提案した Ephemeral Data Derived Potentials (EDDP)を用いてモデリングを行い、学習パラメータとモデリング精度の関係を評価した[4]。

結果と考察: ポテンシャルモデルの学習に用いるデータ数やカットオフ半径(R_c)などのパラメータを振り、エネルギーの二乗平均平方誤差(RMSE)を調べた。これにより、データ数を増やすと RMSE が減少し、カットオフ半径は 5.5 Å 程度で RMSE の減少が緩やかになる結果を得た。次に、得られた EDDP に対して、フォノンバンドを用いて評価を行った。まず、RMSE を減少させたデータ数とカットオフ半径の調整を行い作成した orthorhombic 相(o-相)の HfO_2 のフォノンバンドを図 1 に示す。この結果からパラメータの最適化によりフォノンバンドでエネルギーが負となり不安定となる部分が縮小していることが示され、モデリングの妥当性が向上することが確認された。さらに、学習ポテンシャルの数を増やすことによる妥当性の向上を示す結果を得た。得られたモデルによるフォノンバンドの精度の評価のため、度汎関数法(DFT)のフォノンバンドと EDDP のフォノンバンドを比較した(図 2)[5]。この結果から orthorhombic 相の低エネルギー側においては DFT 計算の結果と良く一致していることが示された。しかし、tetragonal 相(t-相)については低エネルギー側においても不一致が見られた。これは作成した MLPs は t-相が安定する状態を学習できていなかったことを示唆している。

まとめ: 本研究は機械学習ポテンシャルとして EDDP を用いた HfO_2 結晶のモデリングについて、学習パラメータとフォノンバンド計算の妥当性および精度との関係を調べた。その結果データ数、カットオフ半径、学習ポテンシャル数が重要であることを示した。そして、この手法は HfO_2 の一部の結晶を再現可能であるが、すべての結晶相を再現する MLPs の作成には学習データや学習手法の改善が必要であることが

示唆された。

謝辞: 本研究は東京エレクトロンテクノロジーソリューションズ株式会社におけるインターンシップで行われた。

References: [1] R. Batra et al., J. Phys. Chem. C 121 4139–45 (2017). [2] Y. Zhou, et al., Computational Materials Science, Volume 167, Pages 143–150, ISSN 0927-0256, (2019). [3] M. Kobayashi et al., Nano Convergence 9, 50 (2022). [4] C.J. Pickard, Phys. Rev. B 106, 014102 (2022). [5] Fan, S., Singh, S., Xu, X. et al. npj Quantum Mater. 7, 32 (2022).

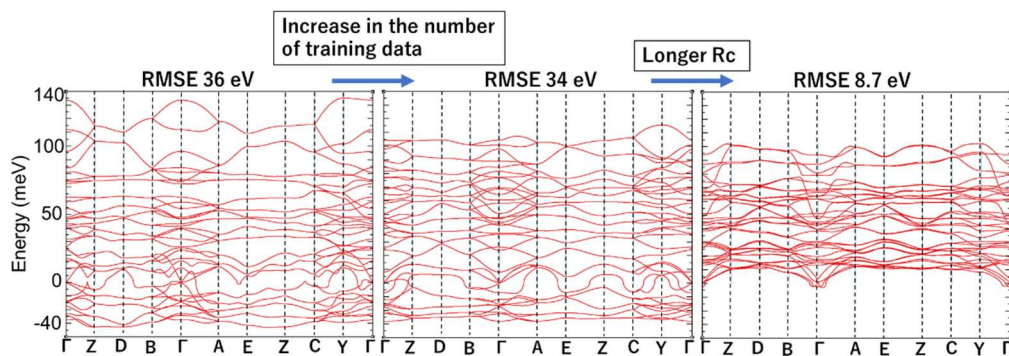


Fig. 1: Phonon dispersion of o-phase HfO_2 .

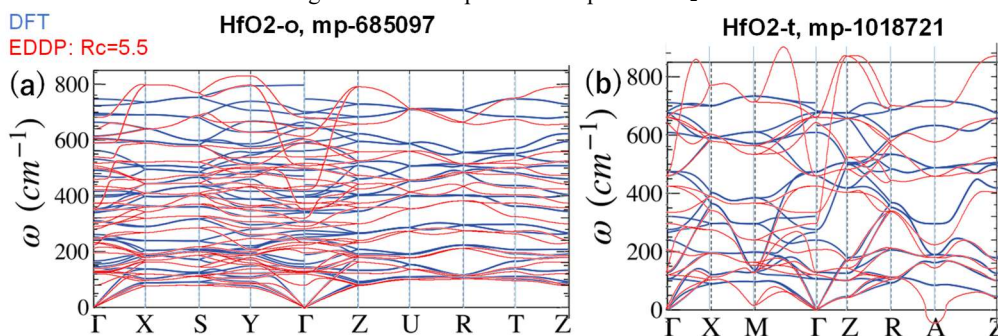


Fig. 2: Phonon dispersion of o-phase HfO_2 .

アモルファス HfO₂ における酸素の拡散

Diffusion of oxygen in amorphous HfO₂

滋賀県大工¹, 阪大産研² °(M2)本図 優奈¹, 仲村 龍介¹, 鈴木 健之²

Univ. of Shiga Pref.¹, SANKEN Osaka Univ.²,

°Yuna Motozu¹, Ryusuke Nakamura¹, Takeyuki Suzuki²

E-mail: on21ymotozu@ec.usp.ac.jp

【背景と目的】メモリの小型化に伴って 10 nm 以下の薄膜でも強誘電性を維持できる材料が模索されており, HfO₂ 基酸化物は有力な候補の一つである. HfO₂ の強誘電性は直方晶構造をもつ準安定相に由来する. 一般的に, 準安定相はアモルファスの加熱結晶化により得られる. 材料プロセス設計においてアモルファス HfO₂ (a-HfO₂) の結晶化および拡散挙動を明らかにすることが重要である. 本研究では, 基板上に一様な a-HfO₂ 薄膜を作製し, 二次イオン質量分析法 (SIMS) により主成分の酸素の長距離拡散プロファイル測定して, 酸素の拡散係数を決定した.

【実験方法】高周波スパッタリング装置を用いて直径約 100 mm の HfO₂ 焼結体ターゲットをスパッタし, シリコン (Si) 基板に成膜した. アルゴン圧力を 0.7 Pa, 高周波出力を 150 W とした. 液体窒素を用いて, 基板温度を -40 °C 以下に保持しながら, 膜厚 100 nm を堆積し, 一様なアモルファス薄膜を得た. アルミナ管の先端に試料を入れて 7.0×10^{-4} Pa 以下に排気し, 酸素 (¹⁶O₂) を封入して, 所定の温度に保持した管状炉に挿入して予備アニールを施した. ¹⁶O₂ を排気して, 質量数 18 の安定同位体酸素 (¹⁸O₂) を封入して拡散アニールした. 酸素の圧力を 1.00 kPa とした. アニールの温度範囲を 300 °C ~ 500 °C, 時間を 1 h ~ 96 h とした. SIMS により拡散試料の ¹⁸O の長距離拡散プロファイル測定した.

【結果と考察】Fig. 1 に拡散試料における深さ方向の二次イオン強度プロファイルの一例を示す. 拡散アニールによって試料中の ¹⁶O が ¹⁸O と交換し, 試料表面から深さ方向に ¹⁸O の強度分布が得られた. ¹⁸O の強度を酸素の総強度で除して, ¹⁸O の濃度 c とした. Fig. 2 に 400 °C 96 h の ¹⁸O の濃度プロファイルを示す. 外界と拡散媒体の流束の一致を考慮した誤差関数型の濃度分布の式[1]を適用すると赤線のようになり, 表面交換係数と拡散係数を決定した. 300 °C ~ 500 °C における酸素の拡散係数は, $3.0 \times 10^{-23} \sim 2.1 \times 10^{-19} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ と得られた. これらの値は HfO₂ の安定相のひとつである単斜晶における酸素の拡散係数[2]よりも 4 ~ 5 桁小さい. これは, アモルファス相中の拡散が安定相中の拡散よりも遅いという特異性を示している.

[1] J. C. Crank, Mathematics of Diffusion, 2nd ed. Oxford University Press, New York, p36 (1975).

[2] M. P. Mueller, R. A. De Souza, J. Appl. Phys., 112,051908 (2018).

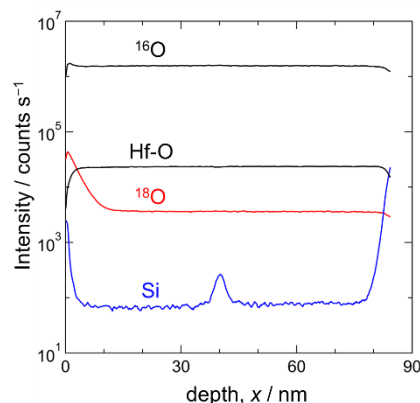


Fig. 1. Depth profiles of secondary-ions intensity in a sample annealed at 300 °C for 48 h.

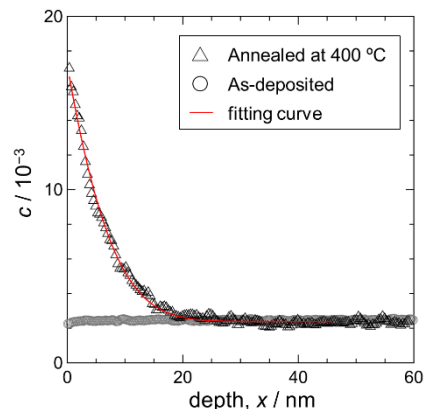


Fig. 2. Concentration profiles of ¹⁸O in a-HfO₂. Open circles and triangles correspond to an as-deposited sample and a sample subjected to diffusion annealing at 400 °C for 96 h, respectively. The solid red line indicates a fitting curve of an error-function type equation to the profile.

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.8】 6.2 カーボン系薄膜、KS.1 固体量子センサ研究会のコードシェア

[20a-A41-1~10] CS.8 6.2 カーボン系薄膜、KS.1 固体量子センサ研究会のコードシェア

[20a-A41-1]

[分科内招待講演] ナノダイヤモンド量子センサの材料設計・制御と生命計測への応用

○五十嵐 龍治^{1,2,3,4} (1.QST量子生命、2.東工大生命理工、3.千葉大院融合理工、4.東北大院医)

[20a-A41-2]

生体量子センサ用ナノダイヤモンドへの電子線照射NVセンター形成²

○阿部 浩之^{1,2}、神長 輝一²、五十嵐 龍治²、大島 武¹ (1.QST量子機能創製研究センター、2.QST量子生命科学研究所)

[20a-A41-3]

ナノダイヤモンド中のNV中心を用いた高感度磁気センシング

○神山 直也¹、藤原 正規¹、森岡 直也^{1,2}、西川 哲理¹、鈴木 智達³、神長 輝一³、五十嵐 龍治³、水落 憲和^{1,2} (1.京大化研、2.京大スピンセンター、3.量研)

[20a-A41-4]

3次元マイクロ波共振器を用いたナノダイヤモンド温度計測とその応用

○中島 大夢¹、押味 佳裕¹、藤原 正澄¹ (1.岡大環自)

[20a-A41-5]

水素終端ダイヤモンド表面下で生じるバンドベンディングのNVセンターを利用した律速要因解析

○蔭浦 泰資^{1,2}、笹間 陽介¹、山田 圭介³、木村 晃介^{3,4}、小野田 忍³、山口 尚秀^{1,5} (1.物材機構、2.産総研、3.量研、4.群馬大、5.筑波大)

[20a-A41-6]

アンサンブルNVによる低周波交流磁界計測

○済藤 紘矢¹、林 司¹、近藤 巧¹、出口 洋成¹、西林 良樹¹、小林 豊¹、藤原 正規²、森下 弘樹³、水落 憲和²、辰巳 夏生¹ (1.住友電気工業(株)、2.京大化研、3.東北大)

[20a-A41-7]

ダイヤモンド量子センサによる交流磁場位相の連続的变化イメージング

○大坪 楓季^{1,2}、見川 巧弥^{1,2}、松崎 雄一郎³、徳田 規夫⁴、早瀬 潤子^{1,2} (1.慶大理工、2.慶大CSR、3.中大理工、4.金大ナノマリ)

[20a-A41-8]

脳磁計測に向けたフラックスコンセンレーターによるダイヤモンド量子センサの高感度化

○城田 一樹¹、関口 直太¹、岩崎 孝之¹、波多野 睦子¹ (1.東工大)

[20a-A41-9]

脳機能磁場測定用ダイヤモンドマイクロNVセンターアレー素子の開発

○黒瀬 範子¹、小幡 孝太郎¹、野村 晋太郎²、杉岡 幸次¹、和田 智之¹、青柳 克信¹ (1.理化学研究所 光量子、2.筑波大学)

[20a-A41-10]

ダイヤモンド量子センサによるミリメートル間隔での同時多点磁場測定法の開発

○吉村 厚美¹、金本 あゆみ¹、関口 直太¹、眞榮 力²、宮川 仁³、谷口 尚³、寺地 徳之³、小野田 忍⁴、大島 武⁴、岩崎 孝之¹、波多野 睦子¹ (1.東工大、2.筑波大、3.NIMS、4.QST)

ナノダイヤモンド量子センサの材料設計・制御と生命計測への応用

Nanodiamond Quantum Sensors in Biological Measurement:

Material Design, Control, and Applications

QST量子生命¹, 東工大生命理工², 千葉大院融合理工³, 東北大院医⁴, °五十嵐龍治^{1,2,3,4}

QST¹, Tokyo Tech², Chiba Univ.³, Tohoku Univ.⁴, °Ryuji Igarashi^{1,2,3,4}

E-mail: igarashi.ryuji@qst.go.jp

量子センサー技術は、量子的な特性をセンシングに活用することで、物理的・化学的パラメータを極めて高い感度と精度で決定する計測技術である。その中でも、ダイヤモンド結晶中の格子欠陥の一種である窒素-空孔中心 (NV センター) は、常温常圧下で、しかもナノサイズの結晶中でも安定に機能することから、生体内微小環境の計測や微量生体分子の検出に革新をもたらす計測技術として生命科学分野で注目を集めている。

これまでの研究で、我々はナノ量子センサーを使った生体計測技術の開発においていくつかの画期的な成果を上げている。たとえば、我々は粒径わずか 5nm のナノダイヤモンドを用いた量子センサーの作成に世界で初めて成功した[1]。これは、爆轟法で生成されたナノダイヤモンドに電子線を照射し、熱酸処理で微細化する技術により達成された。

また、ナノ量子センサーの応用範囲の拡大にも貢献している。従来、NV センターを用いて検出できたのは温度や磁場などの物理パラメータに限られていたが、ナノダイヤモンド表面の官能基に対して特定の化学修飾を行うことで、pH 等の化学的なパラメータをリアルタイム計測することが可能になった[2]。さらに、NV センターと外部磁場とのゼーマン相互作用を 3 次元ナノモーショントラッキングに活用することで、ナノダイヤモンドをプローブとしてわずか 10 nm ほどのタンパク質 1 分子が構造変化する様子を可視化することにも成功した[3]。

我々は、NV センターの検出効率を大幅に向上させる技術も開発してきた。この技術は、スピン操作に基づく蛍光変調をヘテロダイン検出に適用したものであり、これにより夾雑物がもたらす背景光に邪魔されることなく、NV センターの蛍光のみを選択的に検出できるようになった[4,5]。この手法は、医療分野で一般に用いられる免疫アッセイを大幅に高感度化する検出法として、感染症やがん、アルツハイマー病などの早期診断への応用が期待されている[6]。

本講演では、生命現象を理解するためのナノダイヤモンド量子センサ (ナノ量子センサ) の設計と応用について紹介する。まず、ナノ量子センサの基本構造について説明し、特定の生命現象を測定するためのセンサ設計と表面官能基制御を示す。また、ナノ量子センサがどのような生命計測に応用されるか、具体例を交えながら紹介する。特に、細胞内微小環境のリアルタイム計測や、バイオマーカー分子の高感度検出などを取り上げる予定である。

[1] Terada *et al.* *ACS nano* 13, 6461 (2019). [2] Fujisaku *et al.* *ACS nano* 13 11726 (2019). [3] Igarashi *et al.* *Journal of the American Chemical Society* 142 7542 (2020). [4] Igarashi *et al.* *Nano letters* 12 5726 (2012). [5] Yanagi *et al.* *ACS nano* 15 12869 (2021). [6] Miller *et al.* *Nature* 587 588 (2020).

生体量子センサ用ナノダイヤモンドへの電子線照射 NV センター形成 2

Electron Irradiation NV Center Formation on Nano-Diamonds for Quantum Biosensors

Part 2

QST 量子機能創製研究センター¹, QST 量子生命科学研究所² °阿部 浩之^{1,2}, 神長 輝一²,
五十嵐 龍治², 大島 武¹

QST QuBS¹, QST QLMS², °Hiroshi Abe^{1,2}, Kiichi Kaminaga², Ryuji Igarashi², Takeshi Ohshima¹

E-mail: abe.hiroshi2@qst.go.jp

生体ナノ量子センサとして、NV(窒素-空孔)を含む蛍光ナノダイヤモンド (FNDs) の高品質化の研究を進めている。生命現象により誘起される微小温度変化や細胞活性に伴う磁気・電気的变化の検出を活用した生体内のイメージング材料として既に多種細胞への導入試験とともに種々のセンシングを試みている[1]。これら量子計測・センサ技術のためにはより効率的にダイヤモンド NV センター(NVC)を導入することに加え、スピン特性の優れた FNDs 形成が求められており、高蛍光・高感度化 FNDs 形成に向けて電子線照射及びその後の熱処理条件の最適化研究を進めている[2]。

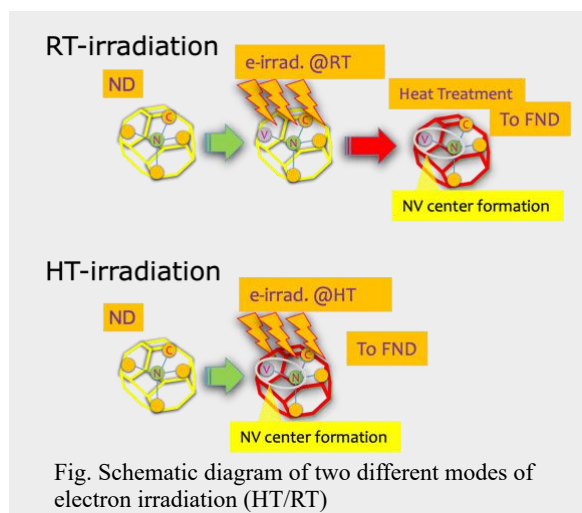
本研究ではナノダイヤモンド(ND, 平均粒径 50 nm)に対し 2 MeV 電子線の照射モード高温照射と室温照射により作製した FNDs について、蛍光強度、NV 濃度と ODMR(光検出磁気共鳴)による dip の深さ測定を実施し、生体ナノ量子センサとして最適な FNDs 形成条件を見出す。高温照射はヒーター加熱しながら電子線照射を実施し、常に照射により形成された欠陥を 900°C 程度に加熱し拡散させながら NV 形成をさせていく。室温照射は照射後 NV 形成のための熱処理プロセスを実施する方法であり、高温/室温照射共にサンプルに対して高温加熱に関わる条件の数値を合わせ、最後に大気雰囲気中 575°C にて 3 時間の熱処理を施すことで表面の炭化層を除去した。これら形成させた NVC についてフォトルミネッセンス(PL: レーザー励起 532 nm)計測、光検出磁気共鳴(ODMR)測定にて dip 深さを測定し、種々の照射条件等について蛍光強度ならびに dip 深さによるセンシング精度についての相関を調べた。

図は 2 つの電子線照射モードの模式図を示す。照射後の NV センター形成熱処理を省いた状態で空気酸化処理をして FNDs としたのが高温(HT)照射である。これら電子線照射手法の違いによる NV 形成について議論する。

【参考文献】

[1] K. Kaminaga et al., Non-contact measurement of internal body temperature using subcutaneously implanted diamond microparticles, Biomater. Sci., 2021, 9, 7049-7053, DOI; 10.1039/d1bm01187a.

[2] 阿部浩之 他、生体量子センサ用ナノダイヤモンドへの電子線照射 NV センター形成、第 84 回応用物理学会秋季学術講演会、2023 年 9 月 19~23 日、熊本城ホール (熊本市・熊本県)



ナノダイヤモンド中の NV 中心を用いた高感度磁気センシング

Study on magnetic sensing with high sensitivity using NV centers in nanodiamonds

京大化研¹, 京大スピンセンター², 量研³ ○(M2) 神山 直也¹, 藤原 正規¹,
森岡 直也^{1,2}, 西川 哲理¹, 鈴木 智達³, 神長 輝一³, 五十嵐 龍治³, 水落 憲和^{1,2}
ICR, Kyoto Univ.¹, CSRN, Kyoto Univ.², QST³ ○N. Kamiyama¹, M. Fujiwara¹,
N. Morioka^{1,2}, T. Nishikawa¹, C. Suzuki³, K. Kaminaga³, R. Igarashi³, and N. Mizuochi^{1,2}

E-mail: kamiyama.naoya.62s@st.kyoto-u.ac.jp

【研究背景】ダイヤモンド中の窒素-空孔(NV)中心は室温でも十分な電子スピンコヒーレンス時間(T_2)を有し^[1]、光とマイクロ波を用いた光検出磁気共鳴(ODMR)を利用することで高感度な量子センサとして期待されている。特に、NV 中心を含むナノダイヤモンド(ND)は、生体毒性が小さい、表面修飾が可能、安定な発光、等の優れた性質から、細胞内微小領域における磁場センサとして注目されている。2008 年には粒径 30 nm の ND 中の単一 NV 中心を用いた交流(AC)磁場センシングにより、磁場感度が $0.5 \mu\text{T/Hz}^{1/2}$ と報告されている^[2]。一方、生体の膜電位が誘起する磁場は典型的に数 nT 程度であるため^[3]、更なる高感度化が要求される。高感度化には個々の ND 中に含まれる NV の個数を増やすことが重要だが、一方で多量の NV は T_2 の低下を招き、感度の低下を生じさせる。そのため、ND の高感度化には高濃度の NV かつ長い T_2 の両立が必要となる。今回、我々は独自に作成した ND 中の NV 中心を用いて、高い磁場感度の実現を試みた。

【実験および結果】実験で用いた粒径数百 nm の ND は量研で開発されたもので、電子線照射後、表面修飾を施している。この ND の希釈懸濁液をカバーガラスに滴下、自然乾燥させ、共焦点顕微鏡で観察した。外部静磁場とほぼ平行な NV 軸を持つ輝点に対してレーザー及びマイクロ波を照射し、図 1 のような ODMR スペクトルを得た。さらに、Rabi 振動測定、Hahn-echo 測定から T_2 を求めた(図 2)。最後に、AC 磁場測定から磁場感度を求めた。発表では、測定結果の詳細について報告する。

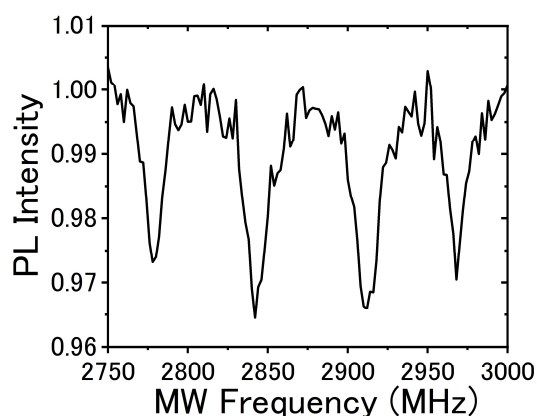


図 1. ND の cw-ODMR 測定

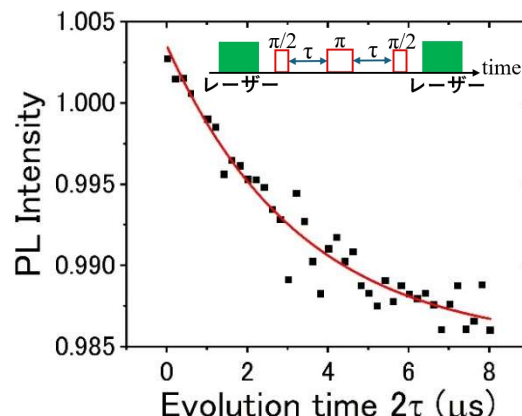


図 2. ND の Hahn-echo シーケンスと測定結果

【謝辞】本研究は、MEXT Q-LEAP (No. JPMXS0120330644)の支援を受けて行われた。

【参考文献】 [1] E. D. Herbschleb et al., *Nat. Commun.* **10**, 3766 (2019). [2] J. R. Maze et al., *Nature* **455**, 644-647 (2008). [3] L. T. Hall et al., *Sci. Rep.* **2**, 401 (2012).

3次元マイクロ波共振器を用いた ナノダイヤモンド温度計測とその応用

Using a 3D Microwave Resonator Nanodiamond Temperature Measurement and its Application

岡山大 理/院環自然

○中島大夢, 押味佳裕, 藤原正澄

Okayama Univ.

Hiromu Nakashima, Keisuke Oshimi, Masazumi Fujiwara

窒素欠陥中心により発光する蛍光性ナノダイヤモンド(FND)では、緑励起光とマイクロ波を用いた光検出磁気共鳴(ODMR)が観測され、これを用いた量子計測が行われている。ODMR測定は蛍光観察と同時に、広範囲、高強度かつ均一なマイクロ波照射が求められる。これまで、マイクロ波照射機構として様々なものが開発され、我々も生体試料に向けたガラスチップ集積化型アンテナを開発した[1]。しかしながら、これらの構造ではマイクロ波電場も生体試料に照射されるという課題があった。そのため、広範囲に磁場照射領域を持ち、電場と磁場がきり分けられる3次元共振器に我々は着目してきた(Fig. 1(a))。これまでに、この3次元共振器の特性評価を行い、FND単体の量子計測を可能にした[3]。しかし、生体応用においては、共振周波数の調整を迅速に行う機構の開発やODMRコントラストの向上という2つの課題が存在している。

本研究では、3次元共振器に共振周波数を即時調整可能な機構を導入し、サンプルの測定位置変化により生じる共振周波数の再調整や再現性の低下を減らした。これにより、短時間で高いコントラストのODMR計測が行えるようになった。さらに、この装置を用いて線虫を測定し(Fig1(b))、0.93のODMRコントラストを達成した(Fig1(c))。講演では温度測定などについても説明する。

本研究の一部は、JSPS (20H00335, 20KK0317, 23KJ1607.), JST (JPMJMI21G1, JPMJAP2339, JPMJFS2128), NEDO (JPNP20004), AMED (JP23zf0127004), 旭硝子財団の支援を受けたものです。

[1] K. Oshimi et al., Lab Chip **22**, 2519 (2022).

[2] E. Eisenach et al., Rev. Sci. Instrum. **89**, 094705 (2018)

[3] 中島ら, 第70回応用物理学会春季学術講演会, 16p-A408-14 (2023年3月16日)

[4] Nakashima et al., manuscript in preparation.

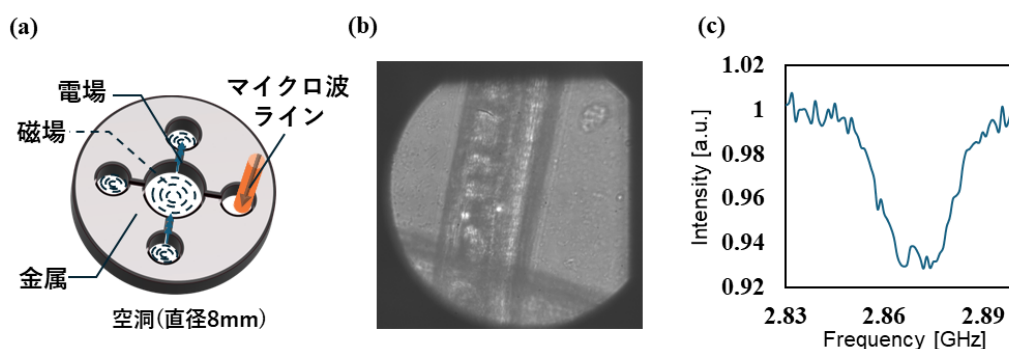


Fig. 1 (a) Schematic of the 3D resonator. (b) Fluorescent image of *C. elegans*. (c) ODMR spectra within *C. elegans*

水素終端ダイヤモンド表面下で生じる
バンドベンディングの NV センターを利用した律速要因解析
Analysis of band bending in hydrogen-terminated diamond
using nitrogen-vacancy centers near the surface

物材機構¹, 産総研², 量研³, 群馬大学⁴, 筑波大学⁵

○薩浦 泰資^{1,2}, 笹間 陽介¹, 山田圭介³, 木村 晃介^{3,4}, 小野田 忍³, 山口 尚秀^{1,5}

NIMS¹, AIST², QST³, Gunma Univ.⁴, Tsukuba Univ.⁵

○T. Kageura¹, Y. Sasama², K. Yamada³, K. Kimura^{3,4}, S. Onoda³, T. Yamaguchi^{1,5}

E-mail: kageura.taisuke@aist.go.jp

水素終端ダイヤモンドの表面直下に誘起される p 型の表面伝導は、不純物添加を伴わない高い伝導率など優れた特性からパワーエレクトロニクスや量子デバイスへの応用が期待されている。この表面伝導の起源は、大気中の分子のダイヤモンド表面への吸着によるトランスファードーピングモデル^[1]で一般的に説明されてきた。このモデルでは、表面近傍におけるバンドベンディングはダイヤモンドと表面吸着分子（アクセプタ）の仕事関数差に律速されると考えられてきた。しかし本研究では、窒素-空孔中心（NV センター）を利用した新計測手法により、表面アクセプタ密度がバンドベンディングの律速要因となる場合があることを明らかにした。

IIa 型{001}ダイヤモンドに、異なる面密度（ 10^{11} - 10^{13} cm⁻²）、10 keV で窒素イオン注入し（平均深さ \approx 15 nm）、熱処理（1000 $^{\circ}$ C, 2h）によって NV を形成した後、プラズマ処理により水素終端を形成したサンプルを作製した。共焦点顕微鏡を用いた PL 強度・スペクトル計測と光検出磁気共鳴（ODMR）法によって NV センターの電荷状態の注入窒素密度依存性を評価するとともに、2 端子計測で表面伝導度を評価した。図 1 のように、大気暴露した我々のサンプルでは表面伝導度の消失と NV⁻状態の発現が同程度（ $\approx 1 \times 10^{12}$ cm⁻²）の注入窒素密度で生じた。この結果とシュレーディンガー・ポアソン方程式に基づいたシミュレーションとの比較により、仕事関数差ではなく、 1×10^{12} cm⁻² 程度の表面アクセプタ密度によってバンドベンディングが律速されていることが示された^[2]。本研究から得られた知見は、低不純物密度および低表面アクセプタ密度が望まれる高周波ダイヤモンドデバイスの開発や動作解析に大きく貢献することが期待される。

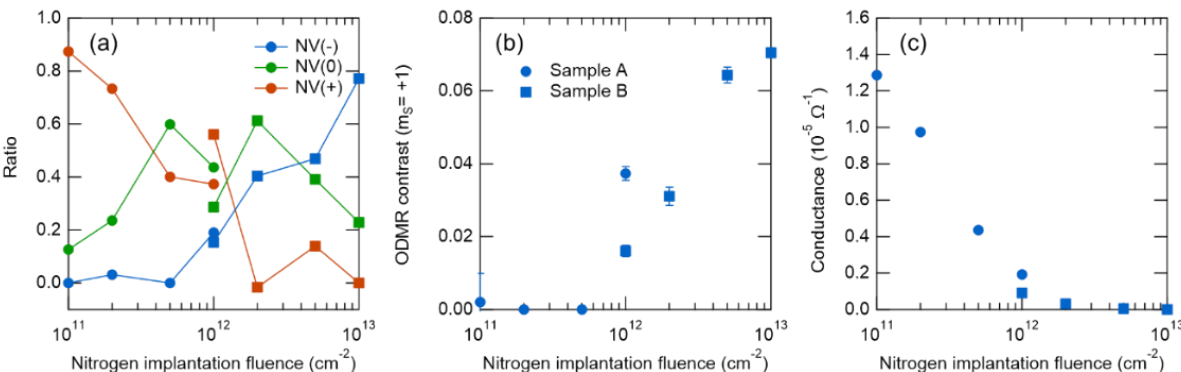


図 1. (a) NV センターの電荷状態、(b) ODMR コントラスト、(c) 表面伝導度の注入窒素密度依存性 [参考文献] [1] F. Maier et.al, PRL, 85, 3472 (2000). [2] T. Kageura et.al, arXiv 2310.17289 (2023)

アンサンブル NV による低周波交流磁界計測

Low-frequency AC magnetic field measurement using ensemble NV

住友電気工業(株)¹, 京大化研², 東北大³ ○済藤 紘矢¹, 林 司¹, 近藤 巧¹, 出口 洋成^{1,2}西林 良樹¹, 小林 豊¹, 藤原 正規², 森下 弘樹³, 水落 憲和², 辰巳 夏生¹Sumitomo Electric industries, Ltd.¹, ICR Kyoto Univ.², Tohoku Univ.³,○Hiroya Saito¹, Tsukasa Hayashi¹, Kondo Takumi¹, Hiroshige Deguchi^{1,2}, YoshikiNishibayashi¹, Yutaka Kobayashi¹, Masanori Fujiwara², Hiroki Morishita³, NorikazuMizuochi², Natsuo Tatsumi¹

E-mail: saito_hiroya@nissin.co.jp; tatsumi-natsuo@sei.co.jp

ダイヤモンド NV では電子スピン共鳴法でスピンを操作することで磁界や電界の計測が可能のため、特に近年センサ用途へのダイヤモンドの開発が進められている。高温高压法で合成したアンサンブル NV (12C 濃縮サンプル) で連続 Ramsey 法を行うことで低周波 (50~200Hz)、交流磁界計測を行った。連続 Ramsey 法とは一般的な Ramsey シーケンスにおいて $\pi/2$ パルス間の時間を任意の値に固定した計測手法であり、マイクロ波照射後のブロッホ球上におけるスピンの XY 面内の回転量は交流強度に依存するため、交流計測が可能になる。

交流磁界強度 $1\mu\text{T}$ ~ 1mT までを計測したところ図 1 に示すように $10\mu\text{T}$ までは磁界強度が大きくなるにつれ交流振幅も大きくなるが、強度が $10\mu\text{T}$ 以上になるとスピンの XY 面内で蛍光のピークを過ぎるところまで回転し、図 2 のように交流波形が折りたたまれた波形になった。またアンサンブル NV ではシングル NV と異なり、3 つの超微細構造で計測されるため観測される波形は 3 つのスピンの波形が合成された波形になった。これら合成波形を解析した結果は図 3 になり、当日はフィッティング手法についても報告する。

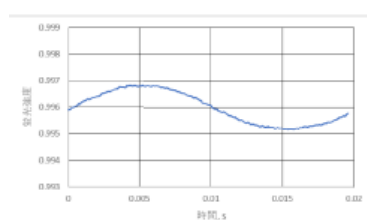


Fig. 1. 交流磁界 10uT

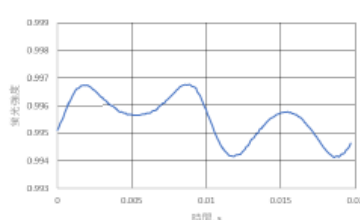


Fig. 2. 交流磁界 40uT

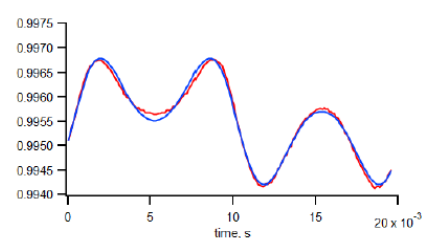


Fig. 3. 交流波形の解析結果 (青線)

【謝辞】本研究は、部分的に MEXT Q-LEAP(No. JPMXS0118067395)の支援を受けて行なった。また、森下は東北大学 CSIS の CSRN の支援を受けた。

(1) E. D. Herbschleb et al., Phys. Rev. Applied 18, 034058 (2022).

ダイヤモンド量子センサによる交流磁場位相の連続的変化イメージング

Imaging of Submicron-Scale Continuous Variation in Phase of AC Magnetic Field around Micro-Circuit with Diamond Quantum Sensor

慶大理工¹, 慶大 CSRN², 中大理工³, 金大ナノマリ⁴

○(M2)大坪楓季^{1,2}, 見川巧弥^{1,2}, 松崎雄一郎³, 徳田規夫⁴, 早瀬潤子^{1,2}

Keio Univ.¹, Keio CSRN², Chuo Univ.³, Kanazawa Univ.⁴

○(B4)Fuki Otsubo^{1,2}, Takumi Mikawa^{1,2}, Yuichiro Matsuzaki³,

Norio Tokuda⁴, and Junko Ishi-Hayase^{1,2}

E-mail: fukiotsubo0918@keio.jp

【背景・目的】近年、電子デバイスの小型化・集積化によって構成回路の微細化・信号の微弱化が進み、測定・解析が困難となっている。ダイヤモンド NV 中心の電子スピン状態を用いた量子磁場センサは、室温下で高感度・高空間分解能を有すること、CCD/CMOS カメラの利用により 2 次元磁場イメージを取得できることから、微細回路イメージの測定が可能なセンサとして期待されている。NV 中心を用いた通常交流磁場計測では、レーザーやマイクロ波の複雑なパルス操作を必要とするが、本研究では電子スピン二重共鳴下で観測される RF-Dressed 状態^[1,2]を用いて、簡便な CW-ODMR による微細回路の周りに発生する交流磁場の振幅^[3]とともに、連続的に変化する位相のイメージングに成功したので報告する。

【方法】Figure 1 に NV 軸に垂直な直流磁場下における電子スピン ($S=1$) のエネルギー準位を示す。エネルギー固有状態は、スピン磁気量子数が $0, \pm 1$ の三重項状態 $|0\rangle$, $|\pm 1\rangle$ の重ね合わせで表され $|B\rangle$, $|D\rangle = (|+1\rangle \pm |-1\rangle)/\sqrt{2}$, マイクロ波によって $|0\rangle \leftrightarrow |B\rangle$, $|D\rangle$ と遷移できる。ここで、 $|B\rangle$ - $|D\rangle$ 間に共鳴する交流磁場 RF_{tar} を印加すると、磁場振幅に比例して $|B\rangle$ と $|D\rangle$ のエネルギー準位が各々 2 つに分裂する。蛍光強度の違いによりこれらの準位を測定することで (CW-ODMR), 振幅 RF_{tar} の測定が行える。さらに測定対象と同じ周波数の参照用交流磁場 RF_{ref} を同時に印加すると、 RF_{tar} との位相差に応じて合成波の振幅および分裂幅が変化するため、位相測定が可能となる。

【結果】Figure 2 に微細回路 ($L/S: 10/20 \mu m$) から生じる交流磁場 (14 MHz) の振幅・位相イメージを示す。サブミクロンの高空間分解能で μT オーダーの交流磁場振幅と位相の 2 次元像を、簡便な CW-ODMR で取得することに成功した。発表では、微細回路上に保護膜を塗布した、より実際の回路状況を模した条件での結果についても議論する。

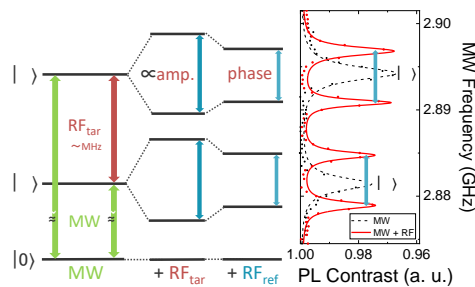


Fig. 1 Energy level and ODMR spectra under electron spin double resonance.

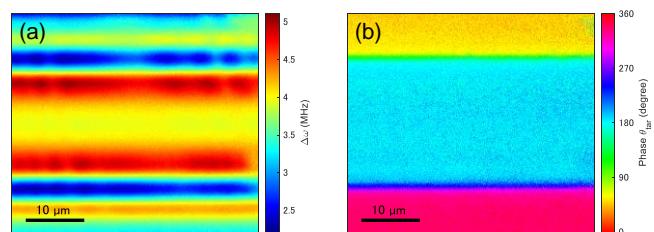


Fig. 2 Images of (a) magnitude and (b) phase of AC magnetic field generated by micro-circuit.

【謝辞】本研究の一部は、科研費 (No. 20H05661, 22H01558), Q-LEAP (No. JP-MXS0118067395), 卓越研究員事業 (No. JR-MJPR1919), 金沢大超然プロジェクト 2022 の支援を受けて行われた。また実験を支援いただいた京セラ株式会社に感謝申し上げる。

[1] S. Saijo, *et al.*, Appl. Phys. Lett., **113**, 082405 (2018). [2] T. Yamaguchi, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., **58**, 100901 (2019).

[3] Karl J. Hallbäck, *et al.*, Proc. SPIE. 117004A (2021).

脳磁計測に向けたフラックスコンセンレーターによる ダイヤモンド量子センサの高感度化

Enhancement in the Sensitivity of Diamond Quantum Sensor using Flux Concentrator toward Magnetoencephalography

東工大¹ ○(M2)城田 一樹¹, 関口 直太¹, 岩崎 孝之¹, 波多野 睦子¹

Kazuki Shirota¹, Naota Sekiguchi¹, Takayuki Iwasaki¹, Mutsuko Hatano¹

E-mail: shirota.k.ac@m.titech.ac.jp

近年、ダイヤモンド中の窒素-空孔中心 (NV センタ) を用いたダイヤモンド量子センサの生体磁気計測への応用が注目されており、弱い生体磁場を測定するために高感度化の研究が行われている[1]。高感度化手法の一つとして、flux concentrator (FC) によって信号磁場を増強する (集磁する) 方法がある[2]。そこで本研究では、小動物であるラットの脳磁の測定を目的に、FC によるダイヤモンド量子センサの高感度化を行なっている。

Fig. 1(a)にフェライト (MN60) で作製した FC の模式図を示す。効率的に集磁するため、予想されるラット脳磁分布を考慮して FC を設計した。1 対の FC の間に NV センタを含むダイヤモンドを設置してダイヤモンド量子センサとして動作させ、FC で集磁した磁場を測定する。この系に対してコイルを用いて一様磁場 B_0 を印加し、磁気副準位 $|m_s = -1\rangle$ と $|m_s = 1\rangle$ の間のゼーマン分裂幅を測定した (Fig. 1(b))。青線は印加した一様磁場から計算した FC なしの場合のゼーマン分裂幅 ($2\gamma_e B_0$, $\gamma_e = 28 \text{ GHz/T}$ は磁気回転比) を表している。測定したゼーマン分裂幅を FC なしの場合の分裂幅と比べると集磁率が計算でき、集磁率は約 7 倍であった。これにより、感度を 7 倍向上できると期待できる。

本研究で使用した NV センタを含むダイヤモンドの作製は、物質・材料研究機構および量子科学技術研究開発機構に行っていただいた。本研究は文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP) JPMXS0118067395 の助成を受けたものである。

[1] N. Sekiguchi *et al.*, Phys. Rev. Applied **21**, 064010 (2024).

[2] I. Fescenko *et al.*, Phys. Rev. Research **2**, 023394 (2020).

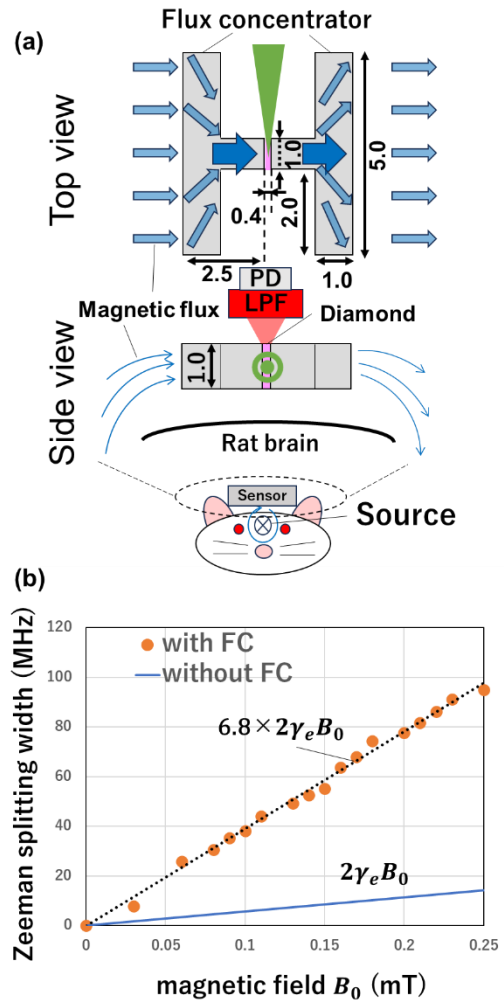


Fig. 1 (a) Schematic diagram of FCs.

PD:photo detector LPF:long pass filter

(b) Zeeman splitting width as a function of an applied magnetic field.

脳機能磁場測定用ダイヤモンドマイクロ NV センターアレー素子の開発

Development of Micro NV Center Array Element of Diamond (MAED)

for Measuring Brain Function Magnetic Fields

理研 光量子¹, 筑波大学^{2,4}

○黒瀬 範子¹, 小幡 孝太郎¹, 野村 晋太郎², 杉岡 幸次¹, 和田 智之¹, 青柳 克信¹

RIKEN Center for Advanced Photonics¹, Tsukuba Univ.²,

○Noriko Kurose¹, Kotaro Obata¹, Shintaro Nomura², koji Sugioka¹, Satoshi Wada¹,

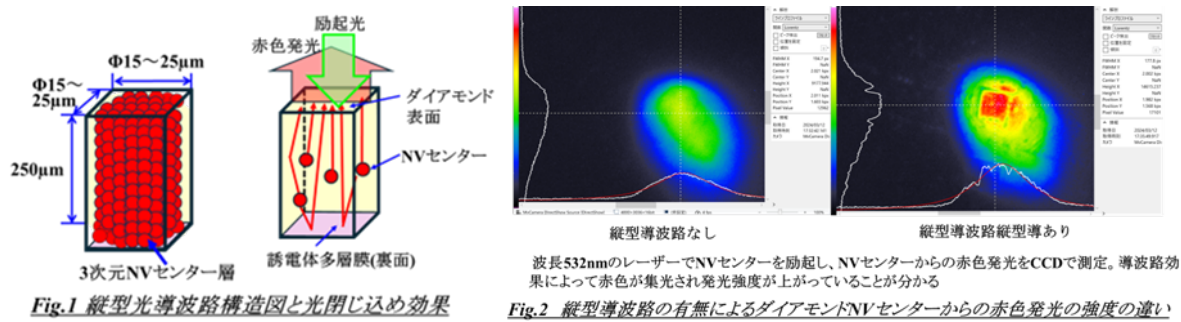
Yoshinobu Aoyagi¹

E-mail: Noriko.kurose@riken.jp

生体機能の解明のために非侵襲で行う脳機能測定方法には脳波計(EEG)、脳磁計 (MEG)、機能的磁気共鳴画像法(fMRI)、陽電子放出断層撮影(PET)などがある。その中で脳神経活動時におこる電気信号をとらえる MEG は高い分解能を持ち、fMRI 画像と重ね合わせて脳活動の測定に用いられている。MEG を用いた脳神経活動の局所情報は SQUID の素子の大きさできまっていたため、神経伝達のやりとりのより詳しい情報は SQUID の分解能でその得られる情報が限られていた。

そこで我々は、SQUID と同等の磁場感度をもつダイヤモンド NV センターを用いて、高分解能局所磁場測定素子の開発を試みた。素子の開発条件は、SQUID と同程度の磁場感度を持っていること、細胞単位での測定のため素子の大きさは 20 μm 前後であること、素子をアレー状に並べて磁場の時系列測定ができること、非侵襲での測定であることの 4 点である。

この条件達成のため、フェムト秒レーザーを用いてダイヤモンド NV センターの品質を上げ、Fig.1 に示すようにダイヤモンドの厚み方向を長さとした導波路を作製することで NV センターからの赤色発光を閉じ込め集光し、高感度・高空間分解能の「縦型光導波路微小磁場計測素子」を開発した。Fig.2 は矩形型縦型光導波路内での発光の閉じ込め効果を示す (左図は導波路なし、右図は導波路あり)。導波路の大きさは 15 μm ~25 μm 四方、長さ 250 μm でアレー状に配置できる。高分解能局所磁場測定のダイナミックな計測が出来れば、脳神経活動あるいは脳神経伝達など脳の中の動きの詳細が可視化できるようになる。



謝辞：本研究は天田財団、上原記念生命科学財団、池谷化学技術振興財団、中谷医工計測技術振興財団の支援を受け、立命館大学・荒木努教授、豊田工業大学・神谷格教授、豊田工業大学・岩田直高教授にご指導を頂きました。

ダイヤモンド量子センサによる ミリメートル間隔での同時多点磁場測定法の開発

Simultaneous multipoint measurement of magnetic field at a millimeter scale interval
using diamond quantum sensors

東工大¹, 筑波大², NIMS³, QST⁴, °吉村 厚美¹, 金本あゆみ¹, 関口 直太¹, 眞榮 力²,
宮川 仁³, 谷口 尚³, 寺地 徳之³, 小野田 忍⁴, 大島 武⁴, 岩崎 孝之¹, 波多野 睦子¹

Tokyo Tech.¹, Univ. of Tsukuba², NIMS³, QST⁴, °A. Yoshimura¹, A. Kanamoto¹, N. Sekiguchi¹,
C. Shinei², M. Miyakawa³, T. Taniguchi³, T. Teraji³, S. Onoda⁴, T. Ohshima⁴, T. Iwasaki¹, M. Hatano¹

E-mail: yoshimura.a.ac@m.titech.ac.jp

ダイヤモンド中の窒素－空孔（NV）中心を利用したダイヤモンド量子センサは、室温でかつ広いダイナミックレンジで微小磁場を測定できる。これらの特徴から、ダイヤモンド量子センサによる生体磁場計測の研究が行われており[1-3]、我々のグループでも小動物の脳磁測定を試みてきた[4]。脳磁から脳活動を推定するには頭皮上の多数点において同時に脳磁を測定する必要がある。しかし現状では、センサヘッドの大きさやマイクロ波干渉などの要因により、ミリメートル間隔の多数点で磁場を高感度に同時測定することは難しい。本研究では、ラットの脳磁同時多点検出を目標に 3 mm 間隔の 2 点で同時に磁場を測定するダイヤモンド量子センサの開発に取り組んだ。

Fig. 1 に測定系を示す。同一のセンサヘッド内に、高温高压法で合成した (111) ダイヤモンドを 3 mm 間隔で 2 個並べて設置した。それぞれのダイヤモンドに側面から 532 nm のレーザー光を入射し、NV 中心からの赤色蛍光を 1 つのフォトダイオード (PD) で検出した。同時計測のポイントは各々のダイヤモンドに同一のバイアス磁場を加えた上で、空間的に不均一な磁場を印加して磁気共鳴ピークを分離させることである。これらの分離した共鳴ピークに対応する 2 つのマイクロ波磁場を異なる変調周波数で周波数変調し、ミリメートル間隔での 2 点同時測定を可能にした。一例として 2 つのダイヤモンドに逆位相のテスト磁場を印加し、3 mm の近距離でそれぞれの位置における磁場を同時に測定した結果を示す (Fig. 2)。それぞれの位置で測定した磁場は、印加したテスト磁場と一致していた。現在、高感度化や、より多点で測定するための開発を行っている。本研究は文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP) JPMXS0118067395 および JPMXS0118068379 の助成を受けたものである。

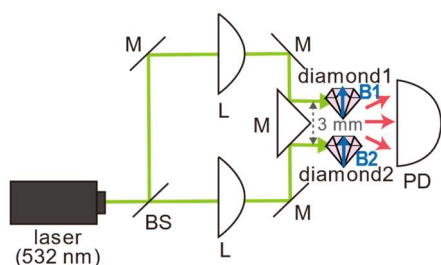


Fig. 1 Experimental setup

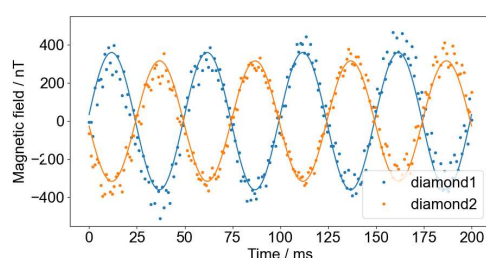


Fig. 2 Measurement of test magnetic field

[1] J. F. Barry *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. **113**, 14133 (2016).

[2] K. Arai *et al.*, Comm. Phys. **5**, 200 (2022).

[3] N. Sekiguchi *et al.*, Phys. Rev. Applied **21**, 064010 (2024).

[4] A. Yoshimura *et al.*, The 84th JSAP Autumn Meeting, Kumamoto, 22p-A601-11 (2024).

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.9】 6.5 表面物理・真空、7.5 原子・分子線およびビーム関連新技術のコードシェア

[16p-D63-1~17] CS.9 6.5 表面物理・真空、7.5 原子・分子線およびビーム関連新技術のコードシェア

[16p-D63-1]

LEED および XPS による Au(111)基板上の $\text{Fe}_3\text{O}_4(111)$ 薄膜の評価

○石原 江湖¹、スバギョ アグス¹、岩崎 翔大¹、大久保 貴生¹、城内 英大¹、八田 英嗣¹、末岡 和久¹ (1. 北大院情)

[16p-D63-2]

InSb(111)A上のスタネン成長に向けたSn蒸着量の影響

○横尾 雄士¹、フロランス アントワヌ¹、高村(山田) 由起子¹ (1.北陸先端大)

[16p-D63-3]

人工光合成触媒Ag/Ga₂O₃の活性に伴う電子状態と反応機構

○(M1)琴川 雄史¹、小川 智史¹、保井 晃³、池永 英司^{1,2} (1.名大院工、2.名大IMaSS、3.JASRI)

[16p-D63-4]

基板面方位制御によるZnO薄膜の熱電特性操作

○小松原 祐樹¹、石部 貴史¹、成瀬 延康²、中村 芳明¹ (1.阪大院基礎工、2.滋賀医科大)

[16p-D63-5]

Si基板上B20-CoSi薄膜のエピタキシャル成長法の開発

○石部 貴史^{1,2}、佐藤 和則³、山下 雄一郎⁴、中村 芳明^{1,2} (1.阪大院基礎工、2.阪大OTRI、3.阪大院工、4.産総研)

[16p-D63-6]

4D-XPSスペクトルビッグデータのNoise2Noiseデノイズングによる多層積層薄膜構造パラメータの高精度抽出

○豊田 智史¹、吉村 真史²、住田 弘祐³、三根生 晋³、吉越 章隆⁴、鈴木 哲⁵、横山 和司⁵、箕輪 卓哉⁶、小椋 厚志^{6,7}、町田 雅武¹ (1.シエンタオミクロン、2.SP8サービス、3.マツダ、4.原子力機構、5.兵庫県大、6.明治大、7.MREL)

[16p-D63-7]

脂質二分子膜と支持基板との間の相互作用

○住友 弘二¹、吉水 寛人¹、大嶋 梓²、山口 真澄²、部家 彰¹ (1.兵庫県立大工、2.NTT物性基礎研・BMC)

[16p-D63-8]

ポリグリセリンアクリル膜と原子状水素との表面反応

○部家 彰¹、藤野 雄飛¹、住友 弘二¹ (1.兵庫県立大工)

[16p-D63-9]

ナノ構造中電子の量子振動の局在プラズモンへの効果 II

○市川 昌和¹ (1.東大院工)

[16p-D63-10]

窒化物半導体表面におけるエレクトロンカウンティング則の検証：ステップおよびキンクを含む表面での検討

○秋山 亨¹、河村 貴宏¹ (1.三重大院工)

[16p-D63-11]

ルチルTiO₂の表面下に存在する酸素空孔の凝集可能性

○加藤 弘一¹、福谷 克之¹ (1.東大生研)

[16p-D63-12]

熔融Ga中Au-Ga合金結晶成長過程の原子スケールAFM分析

○一井 崇¹、安部 耀介¹、村田 真¹、宇都宮 徹¹、杉村 博之¹ (1.京大院工)

[16p-D63-13]

0.2%Be-Cu材料を用いた超高真空容器による積層膜作製と溶接加工

○中村 孝夫¹、佐々木 優直²、岡橋 和成²、岸川 信介²、黒岩 雅英²、大兼 幹彦³ (1.三重大学、2.東京電子株式会社、3.東北大学)

[16p-D63-14]

β-FeSi₂コア/Siシェル量子ドットの形成と室温PL特性

○牧原 克典¹、斎藤 陽斗¹ (1.名大院工)

[16p-D63-15]

二酸化チタンの表面酸素欠損の配列解析

坪倉 奏太^{1,2}、河野 翔也³、野間 春生²、日置 尋久¹、○湊 丈俊⁴ (1.京大人環、2.立命大情報理工、3.九工大、4.分子研)

[16p-D63-16]

超音速NO分子線で照射されたNOのアナターゼ型TiO₂(001)表面における反応

○勝部 大樹¹、金 庚民²、大野 真也³、津田 泰孝⁴、稲見 栄一⁵、吉越 章隆⁴、阿部 真之² (1.ファインセラミックスセンター、2.阪大院基礎工、3.横浜国大院工、4.原子力機構、5.高知工大)

[16p-D63-17]

一段階酸化Loop Aと二段階酸化Loop Bの反応キネティクス: p-Si(001)とn-Si(001)表面の比較

○津田 泰孝¹、吉越 章隆¹、小川 修一²、高桑 雄二^{1,3} (1.原子力機構、2.日本大学、3.東北大学)

LEED および XPS による Au(111) 基板上的 Fe₃O₄(111) 薄膜の評価

Characterization of Fe₃O₄(111) thin films on Au(111) substrates by LEED and XPS

北大院情 ○(M2)石原江湖, スバギョ アグス, (M2)岩崎翔大, (M2)大久保貴生, (M1)城内英大,
八田英嗣, 末岡和久

Graduate School of IST, Hokkaido Univ, °Eko Ishihara, Agus Subagyo, Shodai Iwasaki, Takao
Okubo, Hidehiro Jonai, Eiji Hatta and Kazuhisa Sueoka

E-mail: ishihara.eko.r6@elms.hokudai.ac.jp; agus_subagyo@ist.hokudai.ac.jp

マグネタイト (Fe₃O₄) はフェルミ準位近傍にスピン偏極度-100%の電子状態密度を有するハーフメタルであると予測され^[1,2], 磁気メモリなどのスピントロニクスデバイス材料への応用が期待されている. MgO 基板などを用いて良質なエピタキシャル Fe₃O₄ 薄膜が得られるが, 高密な逆位相境界 (APB) が形成されることや表面再構成によるスピン偏極度の低下などが課題である. 表面スピン偏極度においては, Fe₃O₄ (001)面よりも(111)面が高いとされているためデバイス応用に向けた研究が進められている^[3-5]. 原子スケールの空間分解能を持つ再表面原子のスピン偏極電子状態の検出が可能なスピン偏極走査型トンネル顕微鏡 (SP-STM) による Fe₃O₄(111)表面の評価をおこなうために, 本研究は Au(111)基板上的 Fe₃O₄(111)表面の作製を目的とした.

Au(111)表面上では, Fe 薄膜を酸素雰囲気中の加熱により FeO や Fe₂O₃ の作製はできるが, Fe₃O₄ 表面の作製は困難とされている^[6]. 250°Cより高い温度では Fe が Au 基板に溶け込んでしまうことが状態図よりよく知られているが^[7], Au(111)表面上の Fe 酸化物の作製における議論はなされていないため, 本研究ではその詳細について調べた. まず, Au(111)基板を Ar+スパッタおよび加熱により清浄化した後, 基板温度 200°C, 酸素雰囲気中 (真空度が 7.7×10^{-7} mbar) で Fe を約 0.1 nm/min のレートで成膜した. 得られた Fe 酸化物の組成は FeO であることは XPS より分かった. さらに 200°Cでの酸素雰囲気中の加熱を 30 分間おこない, Fig. 1 に示す LEED 回折像および Fig. 2 の XPS スペクトルより Fe₃O₄ (111)が得られることが分かった^[8]. さらに 400°Cの高温加熱をおこなうと, XPS スペクトルの強度が減り, 一部の Fe が Au 基板内に溶け込むことが分かった.

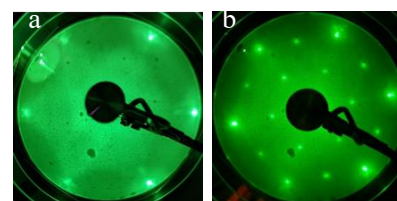


Fig. 1 LEED patterns
(a) Au(111), (b) Fe₃O₄(111)

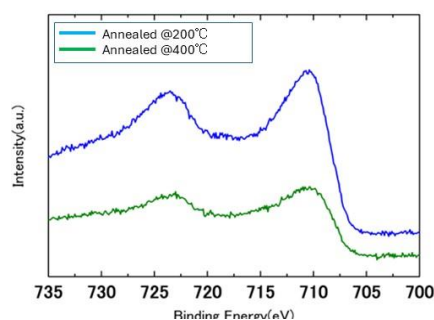


Fig. 2 Fe2p3 XPS spectra of iron oxides

References:

- [1]. A. Yanase *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 312 (1984).
- [2]. Z. Zhang *et al.*, Phys. Rev. B **44**, 13319 (1991).
- [3]. Y. S. Dedkov *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 064417 (2002).
- [4]. M. Kurahashi *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 193401 (2010).
- [5]. A. Pratt *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 180409 (2012).
- [6]. X. Deng *et al.*, Surface Science **604**, 627 (2010).
- [7]. H. Fuse *et al.*, Nanomaterials. **9**, 198(2019)
- [8]. W. Weiss *et al.*, Phys. Rev. B **59**, 5201 (1999).

InSb(111)A 上のスタネン成長に向けた Sn 蒸着量の影響

Influence of Amount of Sn Deposition for Growth of Stanene on InSb(111)A

JAIST [○]横尾 雄士, アントワーン フロランス, 高村(山田) 由起子

School of Materials Science, Japan Advanced Institute of Science and Technology (JAIST)

[○]Takato Yokoo, Antoine Fleurence, Yukiko Yamada-Takamura

E-mail: t-yokoo@jaist.ac.jp

スタネンはスズ (Sn) 原子で構成された座屈したハニカム格子を有する二次元材料であり^[1]、室温での量子スピンホール効果の発現が期待されている^{[2],[3]}。しかし、これまで実験的にスタネンの成長を試みた研究では予測された自立スタネンの電子状態は得られていない。その原因の1つとして、スタネン成長時に使用した基板との格子不整合により歪を有する Sn 薄膜が形成されたことが考えられる。この問題を解決する手段として、自立スタネンに近い面内格子定数を有する InSb(111)A 基板に着目した。本研究では、成長条件の中でも特に成長時の Sn 蒸着量に着目して、InSb(111)A 基板上へのスタネン成長条件の検討を行った。

試料の成長や分析は、Omicron 社製超高真空走査プローブ顕微鏡 (SPM) システム内で行った。InSb(111)A 基板は、0.50 keV の Ar イオンでスパッタリングして自然酸化膜を除去した後、460 °C でアニールを行うことで(2×2)再構成構造が観察された。その基板を室温に保ったまま、1050 °C まで加熱した Sn を 0.124 ML/min で蒸着した。ここでは、自立スタネンの面密度である 1.056×10^{15} atoms/cm² を 1 ML と定義した。Sn 蒸着後、低速電子線回折 (LEED) でモニタリングしながら試料をアニールした。走査トンネル顕微鏡 (STM) 観察は室温下でタングステンチップを用いて行った。

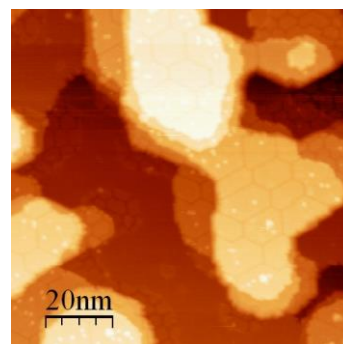


Fig.1 STM image of Sn on InSb(111)A after deposition of 1.86 ML Sn after annealing for 20 min at below 300 °C.

Sn を 0.62 ML 蒸着後に 400~450°C でアニールすると、(2×2)構造に加え、予測されているスタネンに近い格子定数を持つハニカム格子を内部に有する六角形のドメイン構造が観察された。Sn を 1.86 ML 蒸着した場合、Fig.1 のように 0.62 ML 蒸着時と同じサイズのドメイン構造とより大きなサイズを有するドメイン構造が形成された。サイズが大きなドメインは、 α -Sn 数層分の高さの島上に形成されており、加熱時間の長さとともに島の高さは減少する傾向が見られた。一方、サイズの小さいドメイン構造は、加熱時間の長さとともにその面積を拡大し、0.62 ML 蒸着時に比べて広いドメイン構造が観察された。この実験結果は Sn 蒸着量を調整した上でアニールすることによって、InSb(111)A 上に大面積のスタネンが形成されうることを示唆している。

[1] Y. Xu *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 136804 (2013).

[2] S. Balendharan *et al.*, *Small* **11**, 640 (2015).

[3] C. C. Liu, H. Jiang, and Y. Yao, *Phys. Rev. B* **84**, 195430 (2011).

人工光合成触媒 Ag/Ga₂O₃ の活性に伴う電子状態と反応機構

Electronic Structure and Reaction Mechanism Impacting in Catalytic Activity of Artificial Photosynthesis Catalyst Ag/Ga₂O₃

名大院工¹, 名大 IMASS², JASRI³ ○(M1)琴川 雄史¹, 小川 智史¹, 保井 晃³, 池永 英司^{1,2}

Nagoya Univ. Grad. Sch. Engg.¹, Nagoya Univ. IMASS², JASRI³

○Takeshi KOTOKAWA¹, Satoshi OGAWA¹, Akira YASUI³, Eiji IKENAGA^{1,2}

E-mail: kotokawa.takeshi.i4@s.mail.nagoya-u.ac.jp

1. 背景・目的

近年, 光触媒による人工光合成反応の実現に向けた研究が盛んに行われている. その中で, 酸化物半導体 Ga₂O₃ への Ag ナノ粒子 (Ag NP) 担持と UV 照射によって H₂・CO の生成量が向上することが報告された^[1]. 一般的に, 半導体光触媒での金属 NP 担持による触媒活性の向上の理由は, 界面を通じて光励起で半導体内に生じた励起電子が金属 NP に移動することによる電荷分離であると考えられてきた^{[2][3]}. しかし, この電荷移動のメカニズムは明らかになっておらず, 反応機構に直結する界面における電子状態に触れた議論も少ない. そこで, 本研究は Ag NP/Ga₂O₃ 界面の電子状態を実測し, 「電荷移動を伴う水素生成のメカニズム」と「CO 還元に関わる活性サイト」を考察することを目的とした.

2. 実験

Ag NP 担持 (0.6 wt%) Ga₂O₃ を液中プラズマ法 (SPP)^[4] で作製した. 活性評価では UV 照射下での水素生成量を調べた. さらに, 硬 X 線光電子分光 (HAXPES) を用いて Ag NP と Ga₂O₃ の界面の電子状態の直接測定を行った. これら活性評価と HAXPES の比較から, 水素生成量が多い光触媒反応後の試料で特異な状態密度 (DOS) が観測された. そこで, 第一原理計算 (Quantum ESPRESSO^[5], WIEN2k^[6]) によって, 吸着構造および反応機構を考察した. 計算には Ga₂O₃ に加えて, Ga-OH 結合がある GaOOH と Ag-O-Ga 結合がある AgGaO₂ の結晶構造モデルを用いた.

3. 結果・考察

UV 照射下活性評価では, Ag NP 担持の有無によって水素生成速度が 2 倍に向上した (図 1). これは, 活性向上に Ag NP/Ga₂O₃ 界面が寄与していることを示唆している. 図 2 に Ag NP 担持の有無や作製条件が異なる O1s 内殻スペクトル結果を, 図 3 に計算 DOS をそれぞれ示す. 図 2 において Ag NP 担持前 (Dried) から担持後 (Burnt), 反応後 (UVwet) にかけて Ga-OH 結合や Ag-O 結合が増加することがわかった^{[7][8]}. 前者は水吸着, 後者は Ag NP の表面酸化と考えられる. とくに図 2 の反応後状態では 535 eV 付近に新たな成分が大きく観測された. この成分は Ga 2p_{3/2}, Ag 3p_{3/2} のスペクトルにおいても高束縛側に観測され, これを Ag NP/Ga₂O₃ 界面の Ag-O-Ga 結合と帰属した. この界面結合である Ag-O-Ga 成分が, すべての内殻スペクトルで高束縛側に観測されたことから, Ag-O-Ga の結合は共有結合性が高い結合であると考えられる. さらに第一原理計算の結果 (図 3) より, Ag-O-Ga の混成による結合性・反結合性軌道が Ga₂O₃ のバンドギャップ内に生成され, この軌道が Ga₂O₃ から Ag NP への励起電子の移動に寄与し, Ag NP が水素生成サイトとして機能するメカニズムを考察した.

また, 価電子帯スペクトルでは, Ga₂O₃ と反応後試料との比較で 10 eV 付近と 14 eV 付近に顕著な差異が見られた. DOS 計算によって, この価電子帯の変化は主に水分子との相互作用で生じる -OH 基吸着に由来することを見出した (図 3, GaOOH). -OH 基吸着は内殻スペクトルでも Ga-OH の結合として現れている (図 2). この吸着-OH 基が CO₂ 光還元において極めて重要な構造であると考えられており, CO₂ が -OH 基と反応してギ酸などの中間種への変化を経て CO に還元されるという描像が提唱されている^[9]. このことより, Ag/Ga₂O₃ においては塩基性サイトをもつ Ga₂O₃ が CO₂ 光還元の活性サイトとして機能する可能性を見出した.

本講演ではこれらの詳細について発表する.

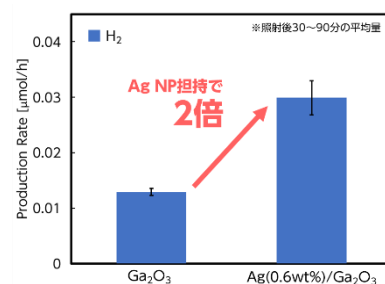


図 1 Ag NP 担持による触媒活性変化

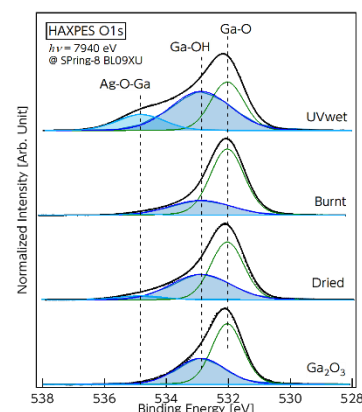


図 2 O1s HAXPES スペクトル

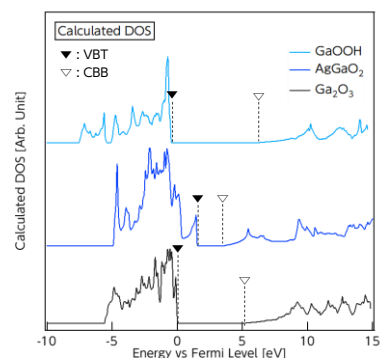


図 3 第一原理計算による DOS 解析

参考文献

- [1] H. Tatsumi, *et al.*, *Langmuir*, **33**, 49, 13929-13935 (2017).
- [2] N. Ojha, *et al.*, *App. Surf. Sci.*, **580**, 152315 (2022).
- [3] R. Yanagi, *et al.*, *ACS Energy Lett.*, **7**, 1, 432-452 (2022).
- [4] P. Giannozzi, *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter*, **29**, 465901 (2017).

- [5] N. Saito, *et al.*, *Thin Solid Films*, **518**, 3, 912-917 (2009).
- [6] P. Blaha, *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **152**, 074101 (2020).
- [7] M. Uenuma, *et al.*, *Phys. Status Solidi B*, **257**, 1900368 (2020).
- [8] D. Hariharan, *et al.*, *J. Photochem. Photobio. B*, **202**, 111636 (2021).
- [9] Y. Kato, *et al.*, *Surf. Interface. Anal.*, **51**, 40-45 (2019).

基板面方位制御による ZnO 薄膜の熱電特性操作

Manipulating thermoelectric properties in ZnO films

by controlling crystal orientation of Al₂O₃ substrate

阪大院基礎工¹, 滋賀医科大², ○(D)小松原 祐樹¹, 石部 貴史¹, 成瀬 延康², 中村 芳明¹

Grad. School of Eng. Sci., Osaka Univ.¹, Shiga Univ. Medical Science²,

○Yuki Komatsubara¹, Takafumi Ishibe¹, Nobuyasu Naruse², and Yoshiaki Nakamura¹

E-mail: u838364f@ecs.osaka-u.ac.jp

【背景・目的】 現在、廃熱を電気へ直接変換可能な熱電発電が IoT センサ用電源として注目されている。熱電変換効率向上には、熱電材料の出力因子 ($S^2\sigma$; S はゼーベック係数、 σ は電気伝導率) の増大、熱伝導率 (κ) の低減が必要である[1,2]。これまで我々は、熱電材料の応用先拡大に向け、透明な熱電材料である ZnO に注目してきた[3]。バルク ZnO の熱電研究の報告例は多いが、その性能には大きなばらつきが存在する。これはバルク材料特有の低い構造制御性が主な原因として考えられる。バルク材料中には歪やドメイン間界面、格子間原子や空孔などの点欠陥、様々な結晶相がランダムに内在し、複雑な構造を形成しているため、これらがキャリアの散乱や状態密度に大きく影響を与える。一方、これら構造の緻密な制御手法は確立されておらず、性能向上要因の特定は難しい。そこで本研究では、面方位が異なる Al₂O₃ 基板上 (c 面、r 面) に ZnO 薄膜を成長して歪、ドメイン界面やその形状と熱電特性との関係を明らかにすることを目的とする。

【実験方法】 薄膜成長には、パルスレーザー堆積装置を用いた。有機洗浄した c-, r-Al₂O₃ 基板を真空槽に導入し、基板温度 560°C で ZnO 薄膜を成長した (レーザー波長: 193 nm、パルス周波数: 10 Hz、エネルギー: 60-80 mJ)。結晶構造評価には X 線回折法 (XRD)、透過電子顕微鏡 (TEM) を用いた。ゼーベック係数測定には ZEM-3、電気特性測定には自作電気特性測定装置を用いた。

【結果】 Al-dope ZnO(AZO)/c-Al₂O₃, AZO/r-Al₂O₃ の XRD (2θ - ω スキャン) 測定および断面 TEM 観察を行ったところ、前者は ZnO[0001]//Al₂O₃[0001], ZnO[1 $\bar{1}$ 00]//Al₂O₃[11 $\bar{2}$ 0] で、後者は ZnO[11 $\bar{2}$ 0]//Al₂O₃[1 $\bar{1}$ 02], ZnO[0001]//Al₂O₃[$\bar{1}$ 104] の結晶方位関係でそれぞれエピタキシャル成長していることが確認された。表面構造観察により、AZO/c-Al₂O₃ では六角形、AZO/r-Al₂O₃ では長方形のドメイン形成を確認した。次に XRD 2θ - ω スキャンの結果から ZnO[0001] 方向の歪を算出すると、AZO/c-Al₂O₃ ではほとんど歪が無かったものの、AZO/r-Al₂O₃ では 0.5% 以上もの歪が存在することが分かった。これらの結果は ZnO と r-Al₂O₃ のエピタキシャル関係から理解できる。また、移動度 (μ) と S を測定すると、ZnO/r-Al₂O₃ の方が低い μ および高い S を示した。本講演では、基板面方位が熱電特性に与える影響について詳述する。

【謝辞】 本研究の一部は、基盤研究 A (23H00258) の支援により行われた。

【引用】[1] Y. Uematsu, et al., Nat. Commun. 15, 322 (2024). [2] T. Ishibe, et al., ACS Appl. Mater. Interfaces 15, 26104 (2023). [3] T. Ishibe, et al., Appl. Phys. Lett. 122, 041603 (2023).

Si 基板上 B20-CoSi 薄膜のエピタキシャル成長法の開発

Development of growth technique of epitaxial B20-CoSi thin film on Si substrate

阪大院基礎工¹, 阪大 OTRI², 阪大院工³, 産総研⁴

○石部 貴史^{1,2}, 佐藤 和則³, 山下 雄一郎⁴, 中村 芳明^{1,2}

Eng. Sci. Osaka Univ.¹, OTRI Osaka Univ.², Eng. Osaka Univ.³, AIST⁴

○Takafumi Ishibe^{1,2}, Kazunori Sato³, Yuichiro Yamashita⁴, Yoshiaki Nakamura^{1,2}

E-mail: ishibe.takafumi.es@osaka-u.ac.jp

【背景】シリサイド薄膜は、Si プロセスとの高い整合性のため、Si 基板上電子デバイス応用に適している。例えば、シリサイド熱電薄膜/Si は、Internet of Things センサ用の自立型ワンチップ電源としての応用が期待される。熱電性能向上には、低い熱伝導率 κ と高い出力因子 $S^2\sigma$ (S : ゼーベック係数、 σ : 電気伝導率) が求められる [1, 2]。近年、Dirac band と Heavy hole band をフェルミ準位近傍に有する B20-CoSi バルクは、Dirac band 由来の高電気伝導率を示すことに加えて、電子-フォノン相互作用による高ゼーベック係数を同時に示すことが報告された [3]。しかし、エピタキシャル B20-CoSi 薄膜/Si を形成した報告は無い。この原因として、Si 基板からの Si 原子拡散による CoSi 薄膜中の組成比ずれが考えられる。そこで本研究では、Si 基板と薄膜の間に成長核層を導入することで、Si 原子拡散の制御を行い、B20-CoSi 薄膜/Si のエピタキシャル成長法を開発することを目的とする。

【方法】分子線エピタキシー法により、Si 基板上 B20-CoSi 薄膜のエピタキシャル成長を行う。Si バッファ層を成膜することで Si 清浄表面を取得した後、成長核層として Co を 20 ML 蒸着した。この成長核層上に Co と Si を同時蒸着し、アニール処理を施すことで B20-CoSi 薄膜をエピタキシャル成長した。構造観察には透過型電子顕微鏡法を、結晶構造解析には X 線回折法を用いた。熱電特性測定には ZEM-3 (Advance Riko Inc.)、4 端子法、Hall 効果測定を、 κ 測定には Time domain thermoreflectance 法を用いた。

【結果】成長核層を導入しない場合、200 度未満の低温では c-CoSi 薄膜が、200 度では CoSi₂ 薄膜が形成された。c-CoSi 薄膜をアニール処理したところ、多結晶 B20-CoSi 薄膜が形成された。一方、成長核層を導入したところ、室温蒸着直後ではエピタキシャル Co₂Si が形成され、アニール処理によりエピタキシャル B20-CoSi 薄膜が形成された。本エピタキシャル薄膜は、多結晶薄膜よりも高い $S^2\sigma$ を示し、有望な熱電材料であることがわかった。本講演では、B20-CoSi 薄膜のエピタキシャル成長条件とそのメカニズムについて詳述する。

【謝辞】本研究の一部は科研費 基盤研究 A (JP23H00258)、基盤研究 B (JP23H01361)、若手研究 (JP24K17613) の支援により行われた。

【参考文献】 [1] Y. Nakamura, et al., *Nano Energy* **12**, 845 (2015)., [2] T. Ishibe, et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15**, 26104 (2023). [3] Y. Xia, et al., *Phys. Rev. Appl.* **11**, 024017 (2019).

4D-XPS スペクトルビッグデータの Noise2Noise デノイジングによる 多層積層薄膜構造パラメータの高精度抽出

High-precision extraction of multilayer stack thin film structure parameters using
Noise2Noise denoising for 4D-XPS Spectrum Big data

○豊田 智史¹、吉村 真史²、住田 弘祐³、三根生 晋³、吉越 章隆⁴、
鈴木 哲⁵、横山 和司⁵、箕輪 卓哉⁶、小椋 厚志^{6,7}、町田 雅武¹

(シエンタオミクロン¹、SP8サービス²、マツダ³、原子力機構⁴、兵庫県大⁵、明治大⁶、MREL⁷)

○S. Toyoda¹, M. Yoshimura², H. Sumida³, S. Mineoi³, A. Yoshigoe⁴,
S. Suzuki⁵, K. Yokoyama⁵, T. Minowa⁶, A. Ogura^{6,7}, M. Machida¹

(¹Scienta Omicron, ²Spring-8 Service, ³Mazda, ⁴JAEA, ⁵Univ. of Hyogo, ⁶Meiji Univ., ⁷MREL)

E-mail: Satoshi.Toyoda@scientaomicron.com

我々は、X 線光電子分光(XPS)技術を用いて、多層積層薄膜界面における化学反応や機能特性を高解像度で可視化する手法を開発している。本手法では、時間や空間などの情報を含んだ 4D-XPS スペクトルビッグデータを自動解析し、元素濃度プロファイルの 4 次元時空間マッピングを復元する。4K 相当の高解像度で動画を復元するためには、数百億本のスペクトルデータの処理が必要であり、自動化と高速計算がキーポイントとなる。そこで、昨年度の応用物理学会では、解析アルゴリズムの工夫により、コンピュータのメモリ負荷の低減に加えて、GPGPU 演算を導入して高速処理の実現を報告した[1]。

一方で、このようなスペクトルビッグデータを現実問題として取得する場合、計測が短時間化することによりポアソンノイズが増大して、解析結果が不安定化してしまう。この問題を解決するため、画像復元分野で知られている Noise2Noise 深層学習技術[2]をスペクトルデータのデノイジング処理に用いることを検討しており、多層積層薄膜界面動態の動画シミュレーションや実験データから得られた深さ方向解析結果のデータノイズ由来のばらつき低減に成功している[3]。

本発表では、ユーザーが実際にスペクトルビッグデータ解析を行う場合を想定して、多層積層薄膜構造パラメータの膜厚と元素濃度の高精度抽出を目的とし、4D-XPS スペクトルビッグデータ(1 億本)のノイズの度合いをより系統的に変化させる(10 水準)ことで、そのデノイジング効果を調査した。図 1 は、そのスペクトルデータの例で、縦方向がノイズの度合い、横方向はデータの積算数(1~10⁸)を表現している。

【参考文献】 [1] 豊田他、第 84 回応用物理学会秋季学術講演会 21p-A304-2 (2023). [2] J. Lehtinen *et al.*, arXiv:1803.04189.(2018). [3] 豊田他、電子デバイス界面テクノロジー研究会(第 29 回研究会, 2024 年)。

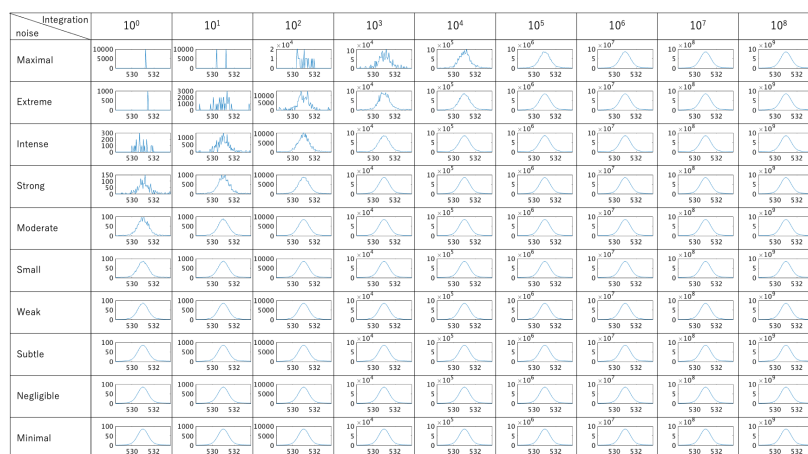


図 1. ノイズの度合いを系統的に変化させた時のスペクトルビッグデータ

脂質二分子膜と支持基板との間の相互作用

Interactions between supported lipid bilayers and substrates

兵庫県大工¹, NTT 物性研/BMC² [○]住友弘二¹, 吉水寛人¹, 大嶋梓², 山口真澄², 部家彰¹

Univ. of Hyogo¹, NTT Basic Research Labs/BMC²,

[○]Koji Sumitomo¹, Hiroto Yoshimizu¹, Azusa Oshima², Masumi Yamaguchi², Akira Heya¹

E-mail: sumitomo@eng.u-hyogo.ac.jp

支持脂質二分子膜は生体膜モデルとして広く研究されている。その流動性は脂質二分子膜の機能を発現する上で不可欠であり、支持基板との間の相互作用は脂質二分子膜を利用したバイオデバイス作製において重要な要素となる。本研究では、脂質分子の側方拡散に影響を及ぼす支持基板との相互作用について議論する。

シリコン熱酸化膜表面上の脂質二分子膜の側方拡散を、光褪色後蛍光回復法 (FRAP) により評価した。Co²⁺イオンをバッファ溶液中に滴下することで蛍光ラベル (NBD) をクエンチし、脂質二分子膜の leaflet 毎の拡散係数を比較した (Fig. 1)。基板から遠い leaflet をクエンチすることにより、蛍光回復は遅くなった。回復曲線は、leaflet 毎に異なる拡散係数を持つモデルでよく一致した。クエンチによる各 leaflet の成分比より、基板に近い側の leaflet は基板からの相互作用が拡散障壁となり拡散係数が減少していることが分かった。基板表面を、正電荷を持つポリマー (poly-*L*-ornithine) でコートした場合、その正電荷が拡散障壁となり拡散係数が大きく減少する (Fig. 2)。基板に近い leaflet が大きな相互作用で拡散係数が大きく減少すると同時に、leaflet 間のカップリングにより、その影響が基板から遠い側の leaflet にも及んでいることが分かった。

基板の表面電荷が脂質二分子膜の側方拡散に及ぼす影響を FRAP 解析で評価した。各 leaflet の拡散係数を区別して評価することで、脂質二分子膜の特性に基板の及ぼす影響を明らかにした。脂質二分子膜を利用したバイオデバイス構築に重要な知見となる。

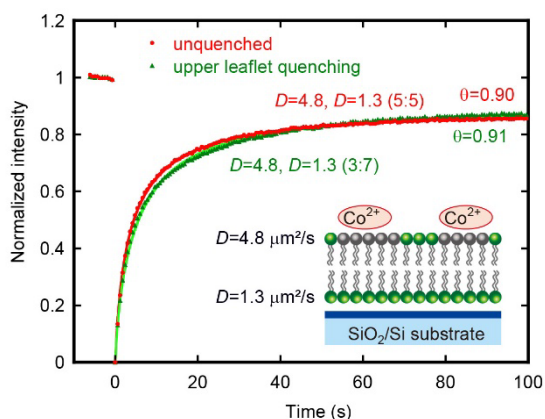


Fig. 1: Fluorescent recovery curves before and after quenching by Co²⁺ ions, and compared with numerical calculation fittings.

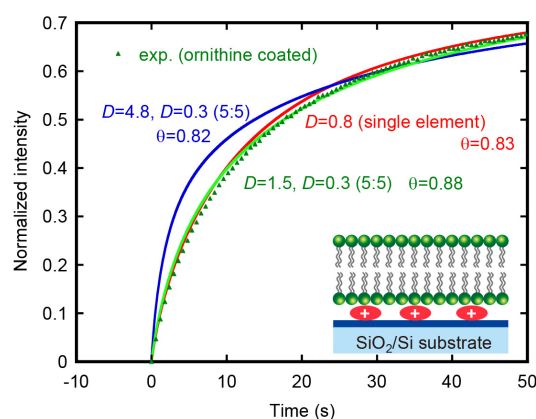


Fig. 2: Lateral diffusion of lipid bilayer supported on poly-*L*-ornithine coated surface.

ポリグリセリンアクリル膜と原子状水素との表面反応

Surface Reaction of Polyglycerol Acrylic Films with Atomic Hydrogen

兵庫県立大工¹ °部家 彰¹, 藤野 雄飛¹, 住友 弘二¹

Univ. of Hyogo¹ °Akira Heya¹, Yuto Fujino¹, Koji Sumitomo¹

E-mail: heyaa@eng.u-hyogo.ac.jp

【背景】水素エネルギーを用いた持続可能な循環型社会の実現のための要素技術として、水素による材料・製品の劣化抑制がある。水素ガス（水素分子）が光や熱などにより分解することで予期せず生成される原子状水素は、水素分子よりも反応性が高く劣化速度に大きな影響を与える。そのため、材料や製品が使用される環境中の原子状水素密度を簡易的に測定することが求められる。我々は膜厚測定用水晶振動子に薄膜を堆積し、その薄膜の原子状水素によるエッチング速度からその雰囲気中の原子状水素密度を計測することを提案している。本研究では、原子状水素密度計測用高分子センサ材料の候補として C-O-C 結合を主鎖とするポリグリセリンアクリル（PGA）と原子状水素との反応について検討した。

【実験方法】Si 基板(20×20 mm²)に PGA(阪本薬品工業製 SA-TE6) 100 μL を滴下し、3000 rpm、30 s の条件でスピコートにより PGA 膜を作製し、その後、150 °C で加熱乾燥した。高密度原子状水素が生成可能な原子状水素アニール（AHA）装置[1]を用いて、H₂ 流量 150 sccm、ガス圧 30 Pa、触媒体(W メッシュ)印加電圧 12 V、電流 30 A、触媒体温度 1700 °C、試料-触媒体間距離 80 mm、処理時間 60 min の条件で AHA 処理した。PGA の表面変化は X 線光電子分光法（XPS）(Al モノクロ、1486.6 eV、ビーム径 100 μm、X 線パワー密度 3.2×10³ W/mm²)で評価した。

【結果と考察】C 1s と O 1s のピーク面積から見積もった O/C 比は AHA 処理により 0.72±0.02 (平均値±標準偏差) から 0.46±0.01 に減少し、還元が起こっていることが示唆された。AHA 処理前後の C 1s XPS スペクトルを波形分離することで得た各結合のピーク面積率を図 1 に示す。PGA を AHA 処理すると C-O-C 結合は 53.7% から 17.5% と大きく減少し、C=O 結合、O=C-OH 結合は若干減少した。一方、C-C 結合は 25.5% から 58.0%、C-OH 結合は 0% から 8.8% に増加した。

この各結合ピーク面積率の変化から予想される PGA と原子状水素との反応機構を図 2 に示す。原子状水素との反応サイトとして(1)C=C 結合、(2)C=O 結合、(3)C-C 結合が考えられる。PGA の主鎖は C-O-C 結合のため、(3)C-C 結合との反応を考える。C-C 結合に原子状水素の付加反応が起こり、主鎖の端部に -CH₃ が形成される。さらに原子状水素との反応により CH₄ となり膜外に放出される。この結果、端部に -C-O- 結合が形成され、原子状水素により終端され、-C-O-H 結合が形成される。この C-OH は原子状水素と反応し H₂O となり、膜外に放出される。このような反応過程により膜中の O 含有量は減少し、C-OH の割合は増加したと考えられる。

AHA 処理により PGA の主鎖の C-O-C が原子状水素と反応することが示唆されたため、PGA は原子状水素密度計測用高分子センサ材料として期待できる。

【謝辞】PGA を提供頂いた阪本薬品工業株式会社様に感謝致します。

[1] A. Heya et al., Thin Solid Films, **625** (2017) 93.

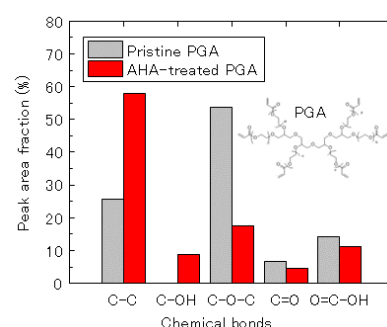


図 1 AHA 処理前後の PGA の各結合のピーク面積率

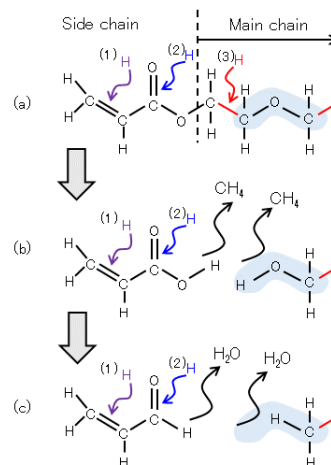


図 2 PGA と原子状水素の反応機構

ナノ構造中電子の量子振動の局在プラズモンへの効果 II

Quantum Oscillation Effect of Electrons in Nanostructures on Localized Plasmons II

東大院工 ○ 市川 昌和

Univ. Tokyo, ° Masakazu Ichikawa

E-mail: ichikawa@ap.t.u-tokyo.ac.jp

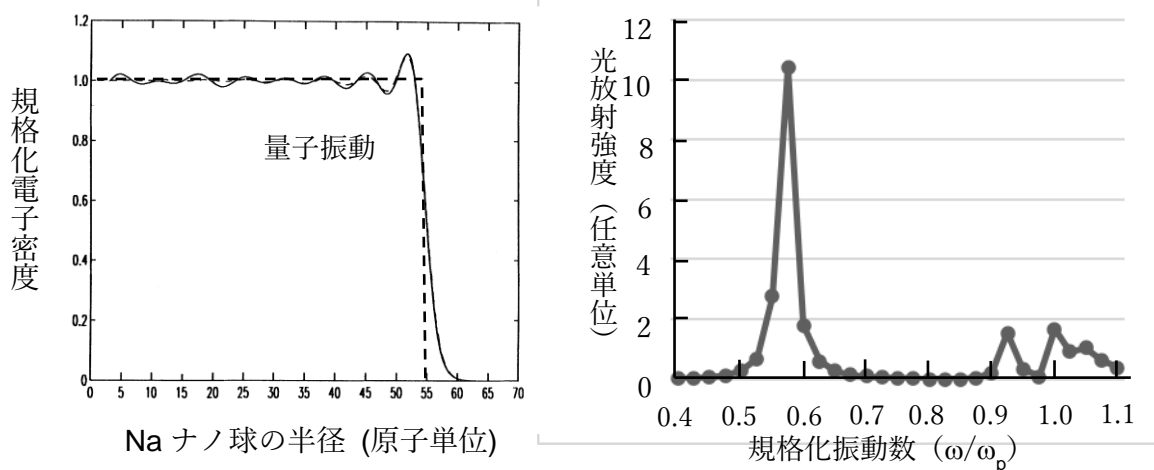
金属ナノ構造内の電磁場の遅延効果を無視する準静的近似を用いると、乱雑位相近似 (RPA) における高周波数条件 (プラズモン周波数領域) において、有効スカラーポテンシャル $\varphi_{\text{eff}}(\mathbf{r}, \omega)$ と外部スカラーポテンシャル $\varphi_{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega)$ は、金属ナノ構造中の局所電子密度を $n(\mathbf{r})$ とすると、電子間のクーロンポテンシャルを含む積分方程式を満たす[1]。

本講演では、金属ナノ構造中の連続的な電子密度変化を考慮してこの積分方程式を数値的に解くことにより、ナノ構造中電子の量子振動の局在プラズモンへの効果について引き続き調べた。

金属ナノ球中の局在プラズモンに注目し、スカラーポテンシャルやクーロンポテンシャルを球面調和関数で展開すると、スカラーポテンシャルの動径方向 r 成分に関する積分方程式が得られる。さらに、これを幅 d で離散化することにより、スカラーポテンシャル $\varphi_{\text{eff}}^m(r_i, \omega)$ に関する以下の線型連立方程式が得られる。

$$[N(r_i) - \lambda] \varphi_{\text{eff}}^m(r_i, \omega) + f_l(r_i) d \sum_{j=1}^i g_l(r_j) \varphi_{\text{eff}}^m(r_j, \omega) + h_l(r_i) d \sum_{j=i+1}^n k_l(r_j) \varphi_{\text{eff}}^m(r_j, \omega) = -\lambda \varphi_{\text{ext}}^m(r_i, \omega)$$

ここで上式中の複数の関数 $N(r_i), f_l(r_i), g_l(r_j)$ などは、半径 r 、局所電子密度 $n(r)$ とその r 微分を含む関数である。ここでは、第一原理計算による Na ナノ球の局所電子密度[2]を使用してこれらを計算した。さらに、上式の右辺をゼロとすると $\lambda = (\omega/\omega_p)^2$ に関する固有値問題となり、共鳴振動数 ω が求まる。ここで、 ω_p はバルクプラズモンの振動数である。



左図はバルクの電子密度で規格化した Na ナノ球 (半径 : 2.9 nm) の局所電子密度であり、表面付近においてフリーデル量子振動が存在する。右図は $l=1, m=0$ において、バルクプラズモンの振動数で規格化した振動数 (ω/ω_p) における光放射強度である。量子振動に起因する電子密度の変化により、理論値の表面プラズモン共鳴振動数である $0.58(1/\sqrt{3})$ 以外に、高周波数領域に複数の共鳴振動数が現れている。当日は、この詳しい数値計算結果と、異なる形状の電子密度を持つ Na ナノ球に関する結果についても報告する。

[1] M. Ichikawa; e-J. Surf. Sci. Nanotech. **19**, 88 (2021). [2] M. Brack; Rev. Mod. Phys. **65**, 677 (1993).

窒化物半導体表面におけるエレクトロンカウンティング則の検証： ステップおよびキンクを含む表面での検討

Validation of the electron counting rule for nitride semiconductor surfaces: effects of steps and kinks on surface stability of vicinal surfaces

三重大院工, ○秋山亨, 河村貴宏

Mie Univ., ○Toru Akiyama, Takahiro Kawamura

E-mail: akiyama@phen.mie-u.ac.jp

【はじめに】薄膜成長の過程において起こる素過程を理解するうえでは、薄膜成長の場となる表面構造の理解は不可欠であり、半導体表面においてはバルク状態での構造とは異なり表面再構成が起こることが知られている。これら表面再構成の安定性を議論するうえでは、表面上に出現するダングリングボンドに存在する電子の過不足数を数えるエレクトロンカウンティング(EC)則[1]の妥当性が、III-V族化合物半導体表面をはじめとする様々な半導体表面において検証されている。また、EC則はダングリングボンドを含まない水素吸着表面に対しても拡張でき、有機金属気相成長(MOVPE)を想定した表面構造の予測にも適用されている[2-5]。一方で、これまでの表面再構成の議論は、表面にステップやキンクを含まない平坦な表面に対するものであり、より現実的な表面に対する検討はほとんどなされていない。本研究では、MOVPEを想定した窒化物半導体表面として、ステップおよびキンクを含む表面における構造安定性の議論をEC則にもとづいて行う。さらに第一原理計算により表面形成エネルギー[4-5]を算出して表面構造安定性を決定し、EC則の適用可能性を検証する。

【結果および考察】Fig. 1はステップおよびキンクを含む AlN(0001)微傾斜面の上面図(の一部)を示したものであり、窒素過剰条件[Fig. 1(a)]および Al 過剰条件[Fig. 1(c)]において安定な(第一原理計算による表面形成エネルギーが低い)表面となっている。また、N 過剰および Al 過剰条件の間で Fig. 1(b)に示す構造も安定となる。これらの表面構造の違いは、吸着する過剰窒素および水素の被覆率にあり、窒素過剰条件においては窒素および水素被覆率の高い NH_2 および水素終端 N 吸着子表面[Fig. 1(a)]が安定となる。 NH_2 が結合することで 0.25 個の不足電子が(NH_2 あたりで)発生し、水素終端 N 吸着子およびステップ端の N 原子を水素で終端することで結合あたり 0.25 個の過剰電子が生成される。従って、全部で 10 個の NH_2 と 24 個の N-H 結合により 3 個の過剰電子が生成され、4 つの窒素ダングリングボンド(Fig.1 の緑丸)へそれぞれ 0.75 個が電荷移動することで不対電子を形成して EC 則を満たす表面となっている。Fig. 1(b)および 1(c)においても Ga-H 結合(-0.25 個)および Ga ダングリングボンド(+0.75 個)を考慮することで、EC 則を満たすことが確認できる。以上の結果は、EC 則が半導体表面構造を決定する普遍的な概念であることを示唆している。

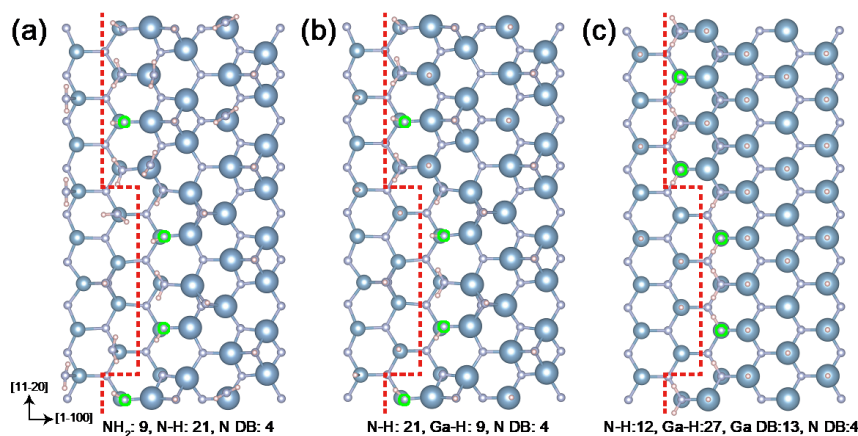


Fig. 1: Top views of AlN(0001) surfaces including steps and kinks considering the surface reconstructions. Blue, purple, and pink circles denote Al, N, and H atoms, respectively. Step edges are indicated by dashed lines, the atoms with N dangling bonds are represented by green circles. Numbers of chemical and dangling bonds (DBs) are also shown.

【参考文献】 [1] M. D. Pashley *et al.*, Phys. Rev. Lett. **60**, 2176 (1988). [2] C. G. Van de Walle *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 066103 (2002). [3] T. Akiyama *et al.*, Appl. Phys. Lett. **100**, 251601 (2012). [4] Y. Kangawa *et al.*, Materials **6**, 3309 (2013). [5] T. Akiyama, in *Epitaxial Growth of III-Nitride Compounds: Computational Approach* (Springer, 2018) pp. 55-92.

ルチル TiO_2 の表面下に存在する酸素空孔の凝集可能性

Condensation of O vacancies under the rutile TiO_2 surfaces

○加藤 弘一、 福谷克之 (東京大学、生産研)

○K. Kato, K. Fukutani (Univ. Tokyo, Institute of Industrial Science)

E-mail: k-kato@iis.u-tokyo.co.jp

アナターゼ、ルチルなど TiO_2 では光励起でポーラロンが生成され、分解した水から水素分子が発生するという光触媒反応機構を明らかにしてきた。[1]ただ、3.0eV 以上のギャップ間準位励起では、太陽光のうちに 5%程度しか利用できない。バンドギャップが大きいと、光触媒反応の実用化には、酸素欠損などでギャップ中準位を利用することが必須である。1eV 以上の光をほぼ活用できれば太陽光のうち 70%近くを利用することができる。酸素空孔の欠陥準位は Ti 原子の非結合軌道から形成され、ギャップ真中付近に存在し、光触媒反応で特に有用となる。そこで、光触媒反応が表面近傍で起きることを考えると、酸素空孔が表面下のどこで安定に存在するかが重要となる。今回はルチル TiO_2 を選んで、酸素空孔が表面からバルク中に向けて安定であることを示した。

さらに、ルチル中の酸素空孔間の相互作用を調べると、図 1 に示すように、酸素空孔生成エネルギーは、結晶のどちらの方向においても酸素空孔が集まる方が小さくなると明らかになりつつある。これらは、一般に空孔が重合することで空孔の内壁面積が小さくなるためと考えられ、エネルギー差は小さいが十分ありえると想定される。4 個までの酸素空孔の重合を想定すると、1 個あたりのエネルギー利得は分極平行方向で 0.15 eV で、分極反平行方向で 0.28 eV となった。これらはエネルギー差としては大きくないものの、酸素空孔の拡散の仕方によっては大きく影響する。酸素空孔拡散を言い換えれば、酸素原子自身の空孔への拡散であり、遷移金属と酸素の結合の付け替えを伴う。遷移金属酸化物の酸素空孔の拡散は比較的容易と考えられ、障壁は大きくないと想定してきたが、大きなエネルギー変化を伴う。そこで、今回はルチル中の酸素空孔の拡散障壁及び、酸素空孔が近づいた時の拡散障壁の変化について解析したので報告する。

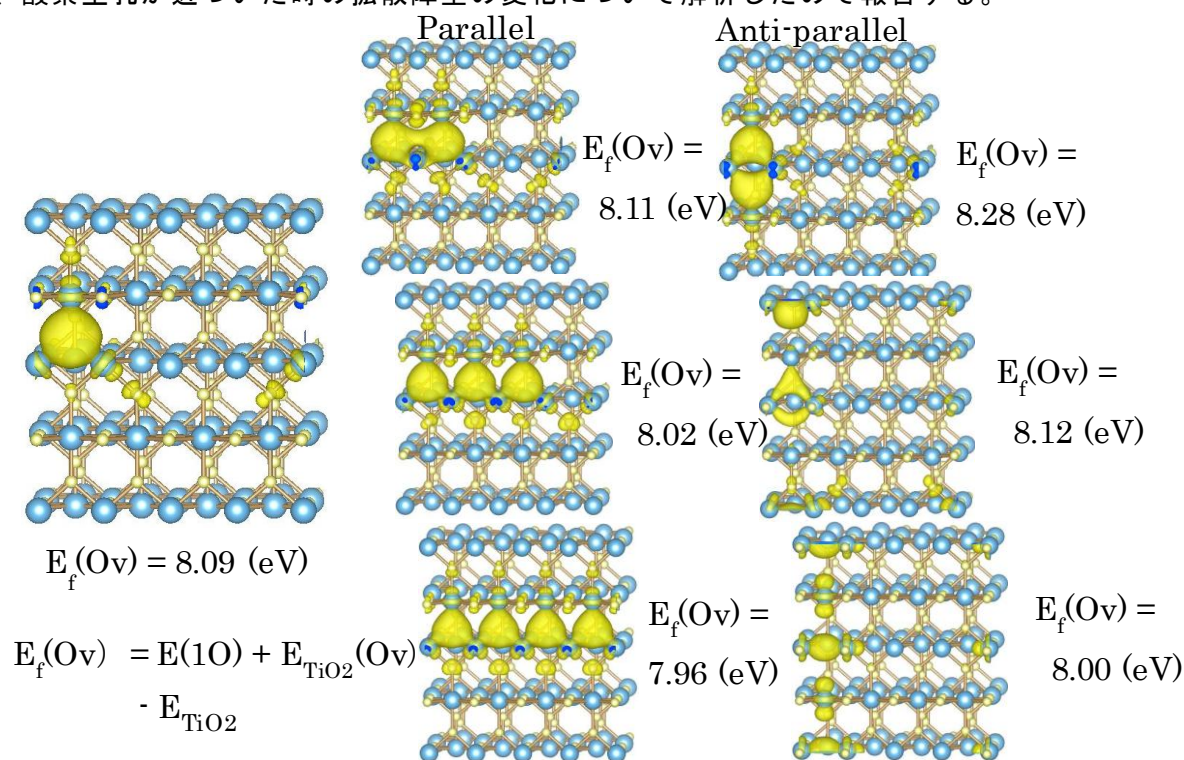


Fig. 1 O vacancies condensation in rutile TiO_2

[1] K. Kato, N. Nagatsuka, and K. Fukutani, JPC C 2024, 128 8188-8198

溶融 Ga 中 Au-Ga 合金結晶成長過程の原子スケール AFM 分析

Atomic-scale AFM investigation of Au-Ga alloy crystal growth process in molten Ga

京大院工 ○一井 崇, 安部 耀介, 村田 真, 宇都宮 徹, 杉村 博之

Kyoto Univ., °Takashi Ichii, , Yosuke Abe, Makoto Murata, Toru Utsunomiya, Hiroyuki Sugimura

E-mail: ichii.takashi.2m@kyoto-u.ac.jp

溶融金属と固体金属の界面分析は、溶融金属めっきやハンダ付けなど、異種金属材料接合形成への応用が期待されるが、直接的な分析手法はほとんどない。固液界面の3次元分析手法の1つである原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscopy; AFM) は、真空中や大気中に加えて、水溶液中、有機溶媒中においても原子スケールでの観察が可能である。しかし、溶融金属は光学的に不透明であるため、光てこ検出系を用いた Si カンチレバーを溶融金属中での観察には適用できない。われわれは、音叉型水晶振動子を用いたフォースセンサ (qPlus センサ) を使用し、溶融金属中での AFM 構造分析を行ってきた。溶融 Ga を Au 薄膜に滴下すると Au-Ga 合金が形成されるが、原子分解能 AFM 分析により、 AuGa_2 の形成およびその(111)面の露出を明らかにした[1]。しかし、 AuGa_2 (111)面は Au 面と Ga 面の二つがあるが、その原子配置は同一であることから、これまで表面原子種の同定には至っていなかった。本発表では、結晶成長過程の in situ 原子分解能 AFM 分析により、表面原子種の同定に成功したのでこれを報告する。

Figure 1(a)は溶融 Ga 中で撮像した Au-Ga 合金結晶の表面形状像であり、slow scan 方向は像の上部から下部へ向けてである。走査が進むにつれ、不連続な高さの増加が確認され、その高さ変化は常に約 0.5 nm であった。これは Au-Ga 合金結晶の沿面成長に由来する。(b)は(a)の高さを平均化したものであり、原子分解能が得られている。この原子コントラストより AuGa_2 (111)の露出が同定された。さらに、沿面成長前後で原子列が見かけ上連続していた。(c) の結晶構造と比較すると、0.5 nm の成長に対し Ga 層(1)と(2)が交互に露出することでしかこの結果は説明できない。すなわち、結晶成長中の in situ 原子分解能分析により、表面原子種は Ga であると同定された。

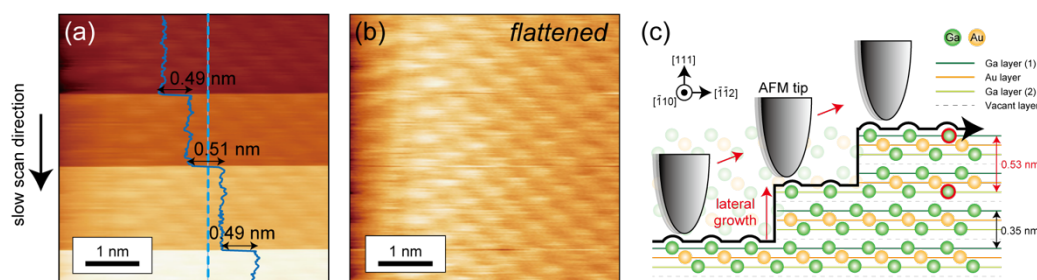


Fig. 1(a) AFM Topographic image of an Au-Ga alloy crystal obtained in molten Ga, (b) The flattened topographic image, (c) Schematic illustration of the crystal growth process of AuGa_2 in molten Ga.

[1] T. Ichii, M. Murata, T. Utsunomiya, H. Sugimura, *J. Phys. Chem. C*, **125**, 26201-26207 (2021)

0.2%Be-Cu 材料を用いた超高真空容器による積層膜作製と溶接加工

Multilayer deposition with ultra-high vacuum vessel and welding using 0.2%Be-Cu material

三重大学¹, 東京電子㈱², 東北大学³

○中村 孝夫¹, 佐々木 優直², 岡橋 和成², 岸川 信介², 黒岩 雅英², 大兼 幹彦³

Mie University¹, Tokyo Electronics², Tohoku University³

○Takao Nakamura¹, Masanao Sasaki², Kazunari Okahashi², Shinsuke Kishikawa², Masahide

Kuroiwa² and Mikihiro Oogane³

E-mail: nakamura-takao@mrpc.mie-u.ac.jp

【背景と目的】0.2%Be-Cu（以下 BeCu）は、SUS 対比で 13 倍の高熱伝導、1/7 以下の低熱輻射、低脱ガスという優れた特性があり超高真空システムの真空部材などに適用されている¹。近年半導体多品種少量生産スキームとして産業技術総合研究所が主導して 1/2" ウェハを用いたミニマルファブシステムの実用化が加速している。ミニマルファブシステムでは小型真空容器を使用することになるが、ウェハ表面積と真空容器の表面積の比率が大型装置に比較して増大し、より真空容器表面品質がプロセスへの影響が必然的に大きくなる²。今回 BeCu 材料を切削加工により作製した真空容器を搭載したミニマル MBE 装置を開発、TMR 磁気センサの基本構造である Fe/Mg/Fe 積層構造を作製し、積層構造の評価を行った。さらに社会実装を目指し低コスト化のため BeCu では切削でしか加工できない課題に対してハイブリッドレーザを用いた溶接適用の検討を行った。

【実験方法】切削加工で作製した BeCu 製真空容器（W180xD180xH189mm）を搭載したミニマル規格に合致した MBE 装置を用い Fe(5nm)/MgO(2nm)/Fe(30nm)積層構造を金属積層膜に成長させた Si, MgO 基板上に作製した。K セルは Fe, Mg の 2 式であり、界面制御が要求される MgO は 1 モノレイヤの Mg 膜成膜後にノズルより酸素を供給するサイクルを複数回行うことで作製し、その後 Fe 膜を成長させた。積層構造は SEM, STEM など構造評価を行った。BeCu 材料の溶接検討は 2 分割した BeCu 製ニップルの接合、SUS 部材と BeCu フランジの接合などについて検討した。溶接には古河電工製ハイブリッドレーザ BRACE-X（青色 1kW, 赤外 3kW）にて行い、リーク量を評価した。さらに溶接部、非溶接部の組成の違いについて XPS にて評価を行った。

【実験結果と考察】Fig.1 にミニマル MBE 装置で成膜した Fe(5nm)/MgO(2nm)/Fe(30nm)積層構造の SEM, STEM 観察結果を示す。TMR センサ構造作製には従来のスパッタが用いられていたが、得られた表面はスパッタ対比平滑な膜が得られた。STEM からは超小型ミニマル装置でも原子層レベルでの結晶成長が可能であり、スパッタ法と比較して良好な Fe/MgO 界面が得られた。ただ表面に Fe の酸化物が生成している課題も明確となった。Fig.2 は BeCu 製ニップルの溶接後、内面研磨後の外観写真である。溶接部の He リーク量も $1\text{E-}10\text{Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$ で漏れはなく真空容器に適用可能な結果を得た。さらに XPS 分析、SUS 部材との溶接も検討しており当日報告予定である。

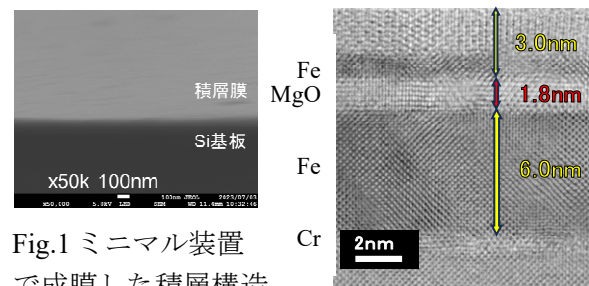


Fig.1 ミニマル装置で成膜した積層構造の評価、左) SEM 右) STEM

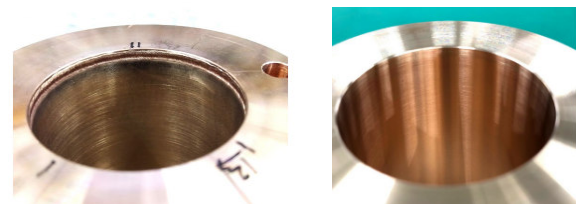


Fig.2 BeCu 製ニップル溶接部の外観写真
左：溶接後、右：研磨後

参考文献

- 1) <https://toel.co.jp>
- 2) 中村孝夫他：表面と真空、66（2023）52
謝辞：本研究の一部は天田財団の支援を頂いた。

β -FeSi₂ コア/Si シェル量子ドットの形成と室温 PL 特性 Formation of β -FeSi₂ Core/Si-Shell Quantum Dots and Their PL Properties

名大院工 °牧原 克典, 斎藤 陽斗

Nagoya Univ., °Katsunori Makihara, and Haruto Saito

E-mail: makihara@nuee.nagoya-u.ac.jp

序 熱酸化 SiO₂ 上にリモート H₂ プラズマ(H₂-RP)支援により Fe ナノドットを高密度($\sim 10^{11}$ cm⁻²) 形成した後、基板温度 400°C で SiH₄ 照射を行うことで β -FeSi₂ ナノドットが形成でき、近赤外領域において明瞭な室温 PL が認められることを報告してきた[1]。また前回、SiH₄-LPCVD により形成した Si 量子ドットの Fe サリサイドプロセス後、SiH₄ 照射を行った場合、 β -FeSi₂ コア/Si シェルドットの形成ができ、室温において PL 信号が認められることを明らかにした[2]。本研究では、形成したナノドットの室温 PL 特性を比較することで、発光メカニズムを検討した。

実験 SiH₄-LPCVD(550°C, 133Pa)により形成した Si 量子ドット($\sim 10^{11}$ cm⁻²)/SiO₂ 構造上に、 ~ 1.0 nm の Fe 膜を電子線蒸着した後、HCl 浸漬により未反応 Fe の除去を行った。その後、基板温度 400°C で SiH₄ 照射(100 Pa, 1800 sec)を行うことで β -FeSi₂ コア/Si シェルドットを形成した。尚、Si/Fe シリサイド/Si 構造の形成は、SOI 基板を用いて同様のプロセスを行い確認した。また、 β -FeSi₂ ナノドット($\sim 10^{11}$ cm⁻²)は、SiO₂/p-Si(100)上に電子線蒸着により膜厚 ~ 1.0 nm の Fe 薄膜を堆積した後、同一チャンバ内にて基板温度 400°C で H₂-RP 処理(60MHz-ICP: 500 W, 10 Pa)を行って Fe ナノドット形成後、引き続き SiH₄ 照射することで形成した。

結果および考察 SOI 基板上の Fe 蒸着した後、HCl 浸漬による Fe 膜除去および SiH₄ 照射した試料の TEM EDX マッピング像を評価した結果 (Fig. 1)、Si/Fe シリサイド/Si 構造の積層構造が認められ、原子濃度分布から FeSi₂ 層の形成が示唆される。予め形成した Si 量子ドットにおいて、同様のプロセスを行った試料では室温において明瞭な PL 信号が認められ、PL 信号は Fe ナノドットへの SiH₄ 照射により形成した β -FeSi₂ ナノドットに比べ狭帯化していることから、均一サイズのコア/シェルドットが形成できていると解釈できる (Fig. 2)。しかしながら、 β -FeSi₂ ナノドット(平均高さ: ~ 3 nm)の PL(~ 0.79 eV)に比べて発光位置が低エネルギー側(~ 0.77 eV)にシフトしていることから、コア/シェルドットの PL 発光は、 β -FeSi₂ コアと Si シェル間での電子-正孔再結合に起因する可能性が高い。さらに、ガウス分布を用いて PL スペクトルを波形分離した結果、 β -FeSi₂ ナノドットは、量子準位間における電子-正孔再結合による Comp.1、Comp.2 とともに、界面欠陥に起因した Comp.3 の3成分で分離できるが、コア/シェル構造では、Comp.3 の低減が顕著であった。これは、シリサイド層表面が Si で覆われていることで表面欠陥が抑制できていると解釈できる。

結論 Si 量子ドットのサリサイドプロセス後、SiH₄ 照射を行うことで β -FeSi₂ コア/Si シェル量子ドットが形成でき、 β -FeSi₂ コアと Si シェル間での電子-正孔再結合に起因する PL が認められることが分かった。

文献 [1] H. Furuhashi et al., Appl. Phys. Exp. 15, 055503 (2022). [2] 斎藤 他, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 25p-31B-5.

謝辞 本研究の一部は、科研費基盤研究(A) 21H04559 および東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究の支援を受けて行われた。

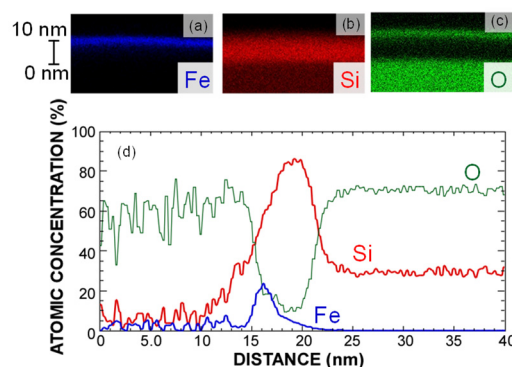


Fig. 1 (a-c) Cross-sectional EDX mapping images and (d) cross-sectional profile of the sample corresponding to Figure 1d', in the EDX mapping images, the blue, red, and green colors correspond to Fe, Si, and O, respectively.

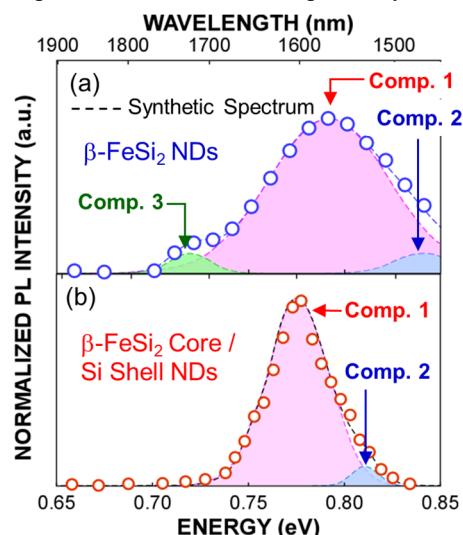


Fig. 2 Room temperature PL spectra of the NDs taken under 967-nm light excitations, and their deconvoluted spectra evaluated from the spectral analysis using the Gaussian curve fitting method.

二酸化チタンの表面酸素欠損の配列解析

Analysis of the alignments of surface oxygen vacancies on titanium dioxide

京大人環¹, 立命大情報理工², 九工大³, 分子研⁴(D1) 坪倉奏太^{1,2}, 河野翔也³, 野間春生², 日置尋久¹, 湊 丈俊⁴Graduate School of Human and Environmental Studies, Kyoto Univ.¹,College of Information Science and Engineering, Ritsumeikan Univ.²,Kyushu Inst. Tech.³,Institute for Molecular Science⁴Sota Tsubokura^{1,2}, Shoya Kawano³, Haruo Noma², Hirohisa Hioki¹, Taketoshi Minato⁴

E-mail: minato@ims.ac.jp

走査プローブ顕微鏡 (Scanning Probe Microscopy : SPM) は、ナノスケールおよび原子スケールでの構造、電気、電子、磁気特性を解析するのに優れた手法であり、高解像度の画像データを与える。従来の SPM 画像解析では、フーリエ変換や自己相関解析などの手法が広く用いられているが、これらの手法では非周期的や複雑な構造を持つデータから局所的な相互作用を解析することが困難である。

本講演では、新たに開発した手法 [1]により、SPM 画像の一部をテンプレートとして使用し、データ画像との差異を局所的に解析することで、特定の局所構造を認識し、局所的な相互作用を解明する。まず、リソグラフィーで作成したナノ構造の SPM 画像解析により、この新しい解析手法の有効性を実証し、さらに、ルチル型二酸化チタンの 110 表面における SPM 画像 [2, 3] 解析を通じて、これらのエネルギー材料の局所的な相互作用の解明に世界で初めて成功した成果を報告する。

参考文献

- [1] Sota Tsubokura, Shoya Kawano, Yumiko Imai, Tadashi Ueda, Kei-ichi Nakamoto, Haruo Noma, Hirohisa Hioki and Taketoshi Minato, *Appl. Phys. Exp.*, **17**, 035003 (2024).
- [2] Taketoshi Minato, *Chem. Rec.*, **14**, 923–934 (2014).
- [3] Taketoshi Minato *et al.*, *ACS Nano*, **7**, 6837–6842 (2015).

謝辞

本研究は、上田正、中本圭一、今井弓子、木村幸代、高田紀子、近藤聖彦（いずれも分子研）の協力によって進められた。ここに謝辞を示す。また、本研究の一部は、文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ事業」(課題番号 JPMXP1222MS0032、JPMXP1223MS0011)の支援を受け、自然科学研究機構分子科学研究所で実施された。

超音速 NO 分子線で照射された NO のアナターゼ型 $\text{TiO}_2(001)$ 表面における反応Reaction of NO molecules on anatase $\text{TiO}_2(001)$ surface by irradiation of supersonic seeded NO molecular beamファインセラミックスセンター¹, 阪大院基礎工², 横国大院工³, 原子力機構⁴, 高知工大⁵○勝部 大樹¹, 金 庚民², 大野 真也³, 津田 泰孝⁴, 稲見 栄一⁵, 吉越 章隆⁴, 阿部 真之²JFCC¹, Osaka Univ.², Yokohama Nat'l Univ.³, JAEA⁴, Kochi Univ. Tech.⁵°Daiki Katsube¹, Kyungmin Kim², Shinya Ohno³, Yasutaka Tsuda⁴, Eiichi Inami⁵, Akitaka Yoshigoe⁴,
Masayuki Abe²

E-mail: daiki_katsube@jfcc.or.jp

エンジンや工場から排出される NO_x 系ガスの削減は地球温暖化の観点から重要な課題となっている。 NO_x 系ガスの一種である NO の無毒化のためには、その反応性や反応メカニズムの理解が重要となる。そこで、アナターゼ型 $\text{TiO}_2(001)$ 表面における NO の反応性を調べたところ、表面の酸素欠陥や OH 基により、表面で起きる NO 分子の反応に違いがあることがわかってきた[1]。本研究では、表面での反応における X 線の照射の有無による影響を超音速 NO 分子線と X 線光電子分光(XPS)により評価した。

試料には、パルスレーザー堆積法により $\text{SrTiO}_3(100)$ 基板上に約 100 nm の膜厚で堆積したアナターゼ型 $\text{TiO}_2(001)$ 薄膜を用いた。アナターゼ型 $\text{TiO}_2(001)$ 薄膜は Ar^+ スパッタリング($\sim 4.00 \times 10^{-4}$ Pa, 1.5 keV)と真空アニール($\sim 850^\circ\text{C}$)により表面の清浄化を行った。実験は SPring-8 BL23SU に設置されている表面化学ステーションで行った。

図は、清浄表面における N1s の XPS スペクトルと清浄表面、および、真空加熱により Ti^{3+} 欠陥が顕著に見えるようになった表面における NO 分子線照射後の N1s の XPS スペクトルである。清浄表面への NO 分子線の照射では、以前報告した通り、N1s スペクトルに状態は確認できない[1]。一方で、NO 分子線照射と同時に X 線を照射していた場合には、399 eV 付近に状態が確認できることから、X 線照射なしで NO 分子線を照射する場合とは異なる反応が起きていることがわかる。講演では、この反応性の違いについて議論を行う予定である。

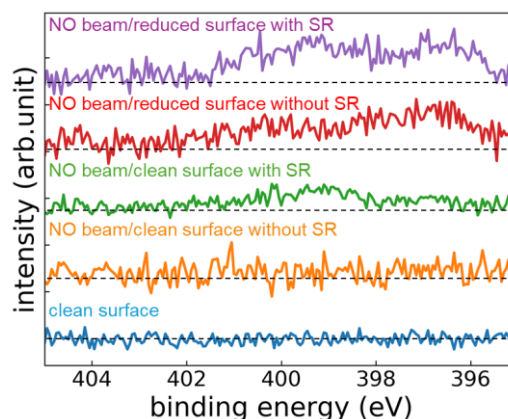


Figure N1s XPS spectrum of anatase $\text{TiO}_2(001)$ clean surface and N1s XPS spectra of anatase $\text{TiO}_2(001)$ surface after NO molecular beam irradiation with/without synchrotron X-ray.

参考文献

[1] 勝部 大樹 他、2023 年第 70 回応用物理学会春季学術講演会、18-a-D519-2 (2023).

一段階酸化 Loop A と二段階酸化 Loop B の反応キネティクス： p-Si (001) と n-Si (001) 表面の比較

Reaction kinetics of Single-step Oxidation Loop A and Double-step Oxidation Loop B: Comparison between p-Si(001) and n-Si(001) surfaces

原子力機構¹, 日本大学², 東北大学³

○津田泰孝¹, 吉越章隆¹, 小川修一², 高桑雄二^{1,3}

JAEA¹, Nihon univ.², Tohoku univ.³

Yasutaka Tsuda¹, Akitaka Yoshigoe¹, Shuichi Ogawa² and Yuji Takakuwa^{1,3}

E-mail: tsuda.yasutaka@jaea.go.jp

Si ドライ酸化における $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$ 界面での反応は、界面欠陥 V^0 において進行することが提案された[1]。 V^0 がバルク Si からの多数キャリア捕獲により活性化(V^+ , V^-)された後、 O_2 分子状吸着、過剰少数キャリアの捕獲を経て O_2 が解離することで SiO_2 が生成する[1-3]。 SiO_2 生成による局所歪みは新たな V^0 生成を誘起し、一段階(Loop A)あるいは二段階(Loop B)の O_2 解離をともなう二種類の反応ループが界面で進行する。本研究では、清浄表面が SiO_2 で覆われるまでの表面酸化領域において、これらの Loop A/B に基づくモデルの適用を検討した。

p-および n-Si(001)清浄表面を、温度 400°C で圧力 $4 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ の O_2 に曝したのち（表面酸化領域）、30 分間 O_2 を止め、続いて圧力 $4 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ の O_2 に曝した（界面酸化領域）。一連の操作中にリアルタイムで O 1s, Si 2p 光電子スペクトルを得た。図 1(a, c)に示した通り、Si 2p 光電子スペクトルの解析から得た SiO_2 膜厚の時間変化はそれぞれ Loop A および Loop B の寄与に明瞭に分離された。表面酸化領域における膜厚成長速度 dX_o/dt は p-Si よりも n-Si の方が大きく、これは主に Loop A に起因することがわかる。一方、界面酸化領域では p-Si の dX_o/dt が n-Si よりも大きく、Loop B が支配的であった。表面反応の律速段階は、Si 基板から物理吸着した $\text{O}_2 \pi_g^*$ 軌道へのトンネル効果による電子移動と考えられるため、電子が多数キャリアである n-Si の方が、Loop A の速度は速くなる。図 1(b)および(d)はそれぞれ p-および n-Si(001)表面酸化領域における O 1s スペクトルのピーク成分：*ins*(Si-O-Si), *tri*(interstitial O), *ad*($\equiv\text{Si-O}$)の時間変化を示す。主に V^0 生成をもたらすのは *ins* であり、実際に *ins* の強度は n-Si のほうが大きい。一方界面酸化反応では、バルク Si から酸化物側に滲み出した電子状態が重要である。放射光により滲み出し状態間で励起した電子は、p-Si では下向きバンドベンディングのために界面に溜まる一方、n-Si では上向きバンドベンディングによりバルク Si に一部移動する。そのため、分子状吸着 O_2 への電子供給は、p-Si の方が起こりやすく、Loop B の速度が速くなる。

[1] S. Ogawa et al., Jpn. J. Appl. Phys. 59, SM0801 (2020). [2] Y. Tsuda et al., J. Chem. Phys. 157, 234705 (2022). [3] Y. Tsuda et al., e-J. Surf. Sci. Nanotech. 21, 30 (2023).

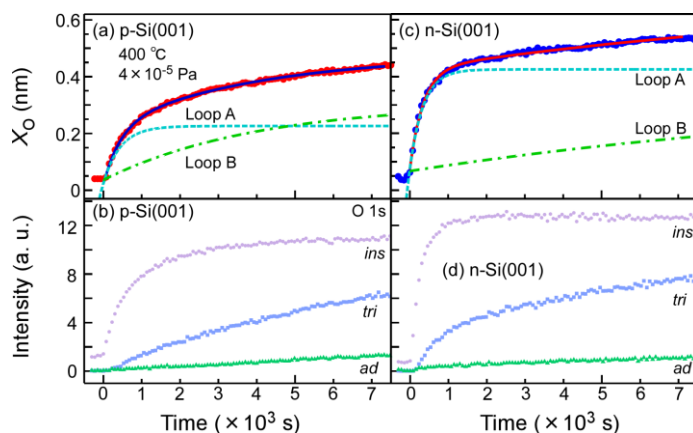


図 1(a, c)p-Si(001)および(b, d)n-Si(001)における表面酸化領域での膜厚 X_o のカーブフィッティングおよび O 1s スペクトルの成分強度変化。

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.10】 6.6 プローブ顕微鏡、12.2 評価・基礎物性のコードシェア

[17p-B4-1~20] CS.10 6.6 プローブ顕微鏡、12.2 評価・基礎物性のコードシェア

[17p-B4-1]

[The 56th Young Scientist Presentation Award Speech] High-Spatial-Resolution Mass Spectrometry Imaging of Mouse Retina by Improved Tapping-mode Scanning Probe Electrospray Ionization

○Mengze Sun¹, Yoichi Otsuka¹, Maki Okada¹, Katsuyuki Nagata², Hideo Shindou², Michisato Toyoda¹ (1.Graduate school of science, Osaka Univ, 2.National Center for Global Health and Medicine)

[17p-B4-2]

[第56回講演奨励賞受賞記念講演] ガラス絶縁電析Au探針による電気化学走査トンネル顕微鏡計測と探針増強ラマン分光への応用

○小林 柚子^{1,2}、横田 泰之¹、高橋 康史^{3,4}、竹谷 純一⁵、金 有洙^{1,6} (1.理研、2.JSTさがけ、3.名大工、4.金大ナノ生命科学研究、5.東大新領域、6.東大工)

[17p-B4-3]

3D-SFMとMDシミュレーションによるアニオン界面活性剤結晶/水界面構造の分子スケール解析

○張 皓輝¹、熊谷 陽一¹、橋本 遼太^{1,2}、宮田 一輝¹、森垣 篤典²、Ygor Morais Jaques³、Adam S. Foster³、柿澤 恭史²、福間 剛士¹ (1.金沢大、2.ライオン(株)、3.Aalto大)

[17p-B4-4]

加熱銅製ノズルを通して蒸着したAu(111)基板上のヘキサブロモトリフェニレン分子のSTM観察

○山口 真広¹、坂上 弘之¹、富成 征弘²、田中 秀吉²、鈴木 仁¹ (1.広島大先進理工、2.情通研機構)

[17p-B4-5]

DPh-BTBT の 1 次元構造におけるHOMOとHOMO-1の軌道混成

○(D)小野 裕太郎¹、岩澤 柁人¹、鶴田 諒平¹、延山 知弘²、小田 将人³、石井 宏幸¹、山田 洋一¹ (1.筑波大、2.京大、3.和歌山大)

[17p-B4-6]

Negative Differential Resistance in Single-Molecule Junctions Based on Heteroepitaxial Spherical Au/Pt Nanogap Electrodes

○(D)Dongbao Yin¹, Miku Furushima², Haru Tanaka¹, Seiichiro Izawa¹, Tomoya Ono², Ryo Shintani³, Yutaka Majima¹ (1.Tokyo Tech, 2.Kobe Univ., 3.Osaka Univ.)

[17p-B4-7]

原子層磁石観察に向けたqPlus AFM/MFM開発 (1)

○(M1)赤松 瞬¹、市川 稜¹、石井 榛¹、Wulfhekel Wulf²、Haghighirad Amir-Abbas²、益井 絵美里³、稲見 栄一³、西脇 悠人⁴、時任 秀慈⁴、一井 崇⁴、山田 豊和^{1,5} (1.千葉大院工、2.カールスルーエ工科大、3.高知工大、4.京大院工、5.千葉大分子キラ研)

[17p-B4-8]

STM誘起発光を用いたキラルPTCDI分子の光学活性評価

○(M2)春名 泰成¹、服部 卓磨¹、松羅 翔大²、齋藤 彰¹、大須賀 秀次²、桑原 裕司¹ (1.阪大院工、2.和歌山大システム工)

[17p-B4-9]

二次元ハニカム格子磁石の表面合成

○山田 豊和¹、石井 榛¹ (1.千葉大院工)

[17p-B4-10]

液中AFMによる半導体ウェーハ絶縁膜表面の吸着力計測

○岡 大輝¹、浅野 吉彦¹、五十嵐 陽彦¹、松元 亨介¹、宮田 一輝¹、宇野 恵²、高東 智佳子²、福間 剛士¹ (1.金沢大、2.荏原製作所)

[17p-B4-11]

全固体電池における活物質間接触と電池容量に関する3次元シミュレーション解析

○前田 泰¹、山岸 裕史¹、蒲生 浩忠¹ (1.産総研)

[17p-B4-12]

基準電位制御法を導入した時間分解静電引力顕微鏡による太陽電池材料評価

○竹本 開太¹、佐藤 捷¹、石橋 亮太¹、高橋 琢二^{1,2} (1.東大生研、2.東大ナノ量子機構)

[17p-B4-13]

ヘテロダイナミックプローブケルビンプローブフォース顕微鏡による有機薄膜トランジスタのキャリアダイナミクス評価

○有長 一輝¹、小林 圭¹ (1.京大工)

[17p-B4-14]

PEDOT-PSS network layers for neuromorphic physical computing

○Meien Sou¹, Yuma Murano¹, Dock-chil Che¹, Syusaku Nagano², Takuya Matsumoto¹ (1.Osaka Univ., 2.Rikkyo Univ.)

[17p-B4-15]

AFM observation of microparticle latex film under tensile strain

○Fengyueh Chan¹, Yuichiro Nishizawa², Yuma Sasaki², Natsuki Watanabe¹, Daisuke Suzuki², Takayuki Uchihashi^{1,3} (1.Nagoya Univ., 2.Okayama Univ., 3.ExCELLS)

[17p-B4-16]

原子間力顕微鏡による単一棒状分子の機械的構造反転

○(PC)岩田 孝太¹、久能 欄丸²、濱田 幾太郎²、櫻井 英博²、杉本 宜昭¹ (1.東大新領域、2.阪大院工)

[17p-B4-17]

σ-非局在系を有する分子接合の電荷輸送特性

○藤井 慎太郎¹、瀬古 紗弥²、田中 泰地²、吉原 勇輝¹、古川 俊輔²、西野 智昭¹、斎藤 雅一² (1.東工大、2.埼玉大)

[17p-B4-18]

単一分子架橋系の整流特性の第一原理計算による研究

○古島 弥来¹、植本 光治¹、小野 倫也¹ (1.神戸大工)

[17p-B4-19]

CNT探針を用いたDNAの液中FM-AFM計測

○水野 雄介¹、宮澤 佳甫^{1,2}、寺前 圭吾¹、児島 亮平¹、福間 剛士^{1,2} (1.金大院、2.WPI-NanoLSI)

[17p-B4-20]

原子間力顕微鏡を用いたシロイヌナズナ細胞の力学特性評価

○山神 見友¹、山崎 勇輝¹、笹井 美佳²、國枝 正^{2,3}、出村 拓^{2,3}、細川 陽一郎^{1,3,4} (1.奈良先端大物質、
2.奈良先端大バイオ、3.奈良先端大CDG、4.奈良先端大MLC)

High-Spatial-Resolution Mass Spectrometry Imaging of Mouse Retina by Improved Tapping-mode Scanning Probe Electrospray Ionization

Graduate School of Science, Osaka Univ.¹, National Center for Global Health and Medicine Research Institute.²

○(D)Mengze Sun¹, Yoichi Otsuka¹, Maki Okada¹, Katsuyuki Nagata², Hideo Shindou², Michisato Toyoda¹

E-mail: sunmengze@phys.sci.osaka-u.ac.jp

Background: Retinas have a complex structure with different layers that play essential roles in visual function. Inside the retina, photoreceptor cells receive light signals and convert them into neural signals that are mainly composed of the outer and inner segment layers (OS and IS) and the outer nuclear layer (ONL). Previous reports have found that mice carrying a frameshift mutation and deficiency in the lysophospholipid acyltransferase 8 (LPLAT8) gene, which produces saturated phosphatidylcholine (PC) from lysophosphatidylcholine (LPC) and saturated fatty acyl-CoA, showed spontaneous retinal degeneration^{1,2}. Understanding changes in lipid distribution is necessary to clarify and elucidate the state of degeneration. Mass spectrometry imaging (MSI) is a powerful method for visualizing the multicomponent distribution in a tissue section. We developed tapping-mode scanning probe electrospray ionization (t-SPESI), an ambient extraction and ionization technique, to visualize lipid distributions inside tissues without special pretreatment^{3,4}. In this study, we compared ion images of different lipids from wild-type (WT) and LPLAT8 knockout (KO) mice to clarify the relationship between retinal degeneration and molecular changes inside the retina.

Method: The WT and KO mouse eyeball sections were prepared using a cryo-microtome with 10 μm thickness mounted on a slide glass and stored in a deep-freezer at $-80\text{ }^{\circ}\text{C}$ before measurement. The probe was fabricated using a laser puller with a tip size of 5 μm . MeOH/DMF (1:1 v/v) was flowed through the probe at a flow rate of 10 nL/min. The probe oscillation frequency was set to approximately 840 Hz. Based on previous research, the oscillation phase was set around -85 degrees (not under the resonant condition) to improve the oscillation stability⁵. The high voltage for electrospray ionization (ESI) was 2.2 kV. MSI measurements were performed with a pixel pitch of 5 μm .

Result: Figure 1a shows overlay ion images of several 8-week WT mouse retina lipids. It is clear that there are several layers, as shown in the HE staining images (Fig 1b). Figures 1c-g show the individual ion images of the different lipids. In the right side of the color square the AA BB:CC, such as PE 38:6 (shown in c) refers to the abbreviations for various lipids. AA refers to lipid classes, such as phosphatidylcholine (PC) and phosphatidylethanolamine (PE). BB and CC are the sums of the carbon number and double bonds of the fatty acids, respectively. These high-spatial-resolution ion images visualize the distribution of different lipids in different layers. For example, PC 32:0 (Fig. 1e), a main product of LPLAT8, and DHA-containing lipids (Figs. 1c and 1f), which mainly exist in the OS & IS and ONL, where the photoreceptor cells are located, as marked by a white arrow. This research will also include MSI for mice of different ages to compare lipid changes during retinal maturation.

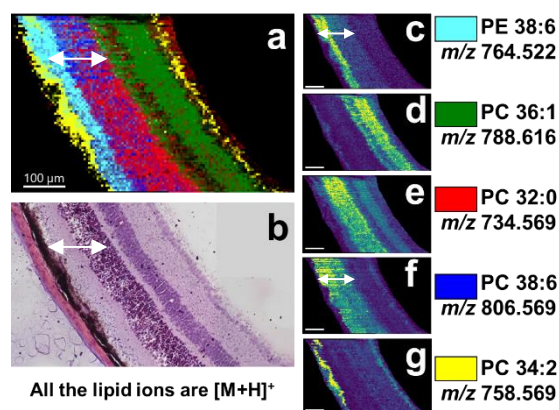


Fig. 1 Lipid ion images and HE-stained images of a WT mouse retina section.

References

[1] K. Nagata, et al. *J. Biol. Chem.*, 298(6), 101958, (2022). [2] J. S Friedman, et al. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 107, 15523–15528, (2010). [3] Y. Otsuka, et al. *Anal. Chem.*, 93, 2263, (2021). [4] Y. Otsuka, et al. *Analyst*, 148, 1275–1284, (2023). [5] M. Sun et al. *Analyst*, submitted.

ガラス絶縁電析 Au 探針による電気化学走査トンネル顕微鏡計測と 探針増強ラマン分光への応用

Electrochemical Scanning Tunneling Microscope Measurements and Tip-enhanced Raman Spectroscopy Using Au Deposited Carbon Electrode Probes

理研¹, JST さきがけ², 名大工³, 金大ナノ生命科学研究⁴, 東大新領域⁵, 東大工⁶

○(P) 小林 柚子^{1,2}, 横田 泰之¹, 高橋 康史^{3,4}, 竹谷 純一⁵, 金 有洙^{1,6}

RIKEN¹, JST PRESTO², School of Engineering Nagoya Univ.³, WPI Nano LSI Kanazawa Univ.⁴,

Graduate School of Frontier Sciences Univ. Tokyo⁵, Faculty of Engineering Univ. Tokyo⁶,

○(P) Yuzu Kobayashi^{1,2}, Yasuyuki Yokota¹, Yasufumi Takahashi^{3,4}, Jun Takeya⁵, Yousoo Kim^{1,6}

E-mail: yuzukobayashi@riken.jp

電気化学走査トンネル顕微鏡(電気化学 STM)は、溶液中の電極表面に金属の探針を近づけてトンネル電流を計測し、ナノスケールの空間分解能で表面形状などを直接的に観察できる手法であり、これを用いた電気化学反応の単分子計測や分光計測を組み合わせた探針増強分光の発展が期待されている[1-3]。我々は、電気化学 STM の探針を、ガラス製のカーボン微小電極に金を電析するという新しい方法で作製することによって、探針作製の成功率が低いという電気化学 STM における長年の課題を解決することに成功した[4,5]。探針周辺のイオンや分子に由来するファラデー電流を抑制するため、従来は、金属線をエッチング等で微細化した探針を、ワックスなどを用いて手作業により被膜する探針作製方法が用いられてきたが、本研究では、先端の直径を数百 nm に微細化したガラスナノピペットにカーบอนを析出させた焼成グラファイト微小電極に[6]、金を電気化学的に析出させる新しい方法で電気化学 STM 探針を作製した(Fig. 1a)。この探針を用いて Au(111)上のターフェニルチオール(self-organized monolayer)の電気化学 STM 測定および探針増強ラマン分光(TERS)を行った(Fig. 1b, c)。

発表では、カーボン電極への電析条件に依存した探針先端形状の変化や、電気化学環境での TERS への展開についても議論する。

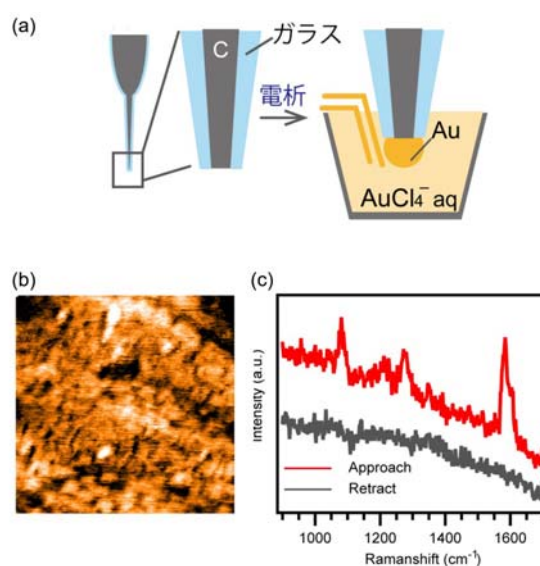


Fig. 1 (a) Schematics of fabrication process of Au Deposited Carbon Electrode Probes for electrochemical STM. (b) An electrochemical STM image and (c) TERS of terphenylthiol self-assembled monolayer on Au(111).

[1] 小林 ほか, 第69回応用物理学会春季学術講演会, 25a-E304-7 (2022). [2] Y. Kobayashi *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **127**, 746 (2023). [3] 小林 ほか, 第70回応用物理学会春季学術講演会, 15a-B508-8 (2023). [4] 小林 ほか, 第71回応用物理学会春季学術講演会, 25a-1BC-2 (2024). [5] Y. Kobayashi *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **127**, 13929 (2023). [6] Y. Takahashi *et al.*, *Angew. Chem. Int. Ed.* **50**, 9638 (2011).

3D-SFM と MD シミュレーションによるアニオン界面活性剤結晶/ 水界面構造の分子スケール解析

Molecular-scale analysis of anionic surfactant crystal-water interface structures
by 3D-SFM and MD simulation

金沢大¹, ライオン(株)², Aalto 大³ ◯張 皓輝¹, 熊谷 陽一¹, 橋本 遼太^{1,2}, 宮田 一輝¹,
森垣 篤典², Ygor Morais Jaques³, Adam S. Foster³, 柿澤 恭史², 福間 剛士¹

Kanazawa Univ.¹, Lion Corp.², Aalto Univ.³,

◯Haohui Zhang¹, Yoichi Kumagai¹, Ryota Hashimoto^{1,2}, Kazuki Miyata¹, Atsunori Morigaki²,

Ygor Morais Jaques³, Adam S. Foster³, Yasushi Kakizawa², Takeshi Fukuma¹

E-mail: zhanghaohui1015@stu.kanazawa-u.ac.jp

近年、カーボンニュートラルの観点から注目されている天然由来の界面活性剤の一つであるアルファスルホ脂肪酸メチルエステル塩は、比較的長いアルキル鎖を持ち、溶解しにくいことが報告されている[1]。この界面活性剤の溶解性を改善し、汎用性を向上させるためには、結晶の溶解を分子レベルで理解することが重要である。我々はこれまでに飽和溶液中の C₁₆MES-Na 結晶表面(Fig. a)を FM-AFM により観察し、分子スケールで整列した点線パターンを可視化した。この結果を MD シミュレーションと比較したところ、これらのパターンがスルホン酸上の水和構造に対応していることを明らかにした[2]。しかし、結晶表面に対する水和構造の空間的な分布には未解明な点が多く残されている。

本研究では、3次元走査型力顕微鏡(3D-SFM)を用いて、C₁₆MES-Na 結晶-水界面の3次元構造をサブナノスケールで可視化した。xy断面上に整列した点線パターンが観察され、同時に縦方向に特徴的な構造分布が得られた(Fig. b)。平均化フォースカーブ(Fig. c)では、表面近傍において2つの傾きを示しており、少なくとも2種以上の水和構造が形成されていることを示唆している(Fig. d)。XY断面(2)(Fig. d(ii))は、以前のFM-AFM観察結果と同様の点線パターンが得られ、これはスルホン酸上の水和構造に対応していると考えられる。一方、xy断面(1)(Fig. d(i))はユニットセルとの関係からスルホン酸上とナトリウムイオン上の両方に密度分布が局在するメッシュ状の水和構造が形成されることを示している。今後、MD計算結果と比較し、水和構造の詳細な理解を目指す。

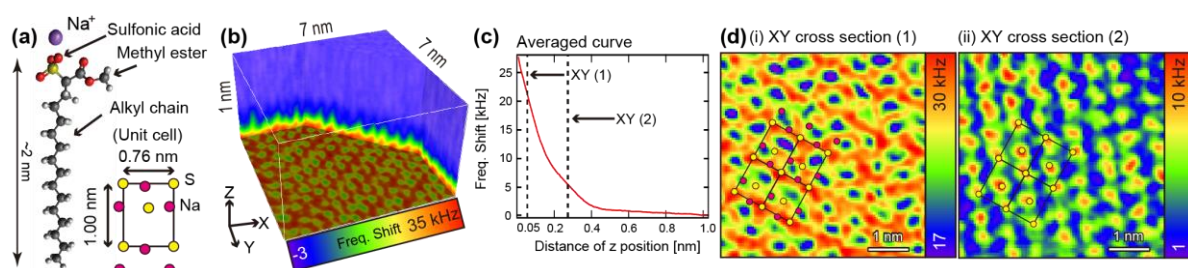


Fig. (a) Model and unit cell of C₁₆MES-Na molecule. (b) 3D-SFM image of C₁₆MES-Na surface. (c) Averaged force-distance curve of 3D-SFM image. (d) Comparison between unit cell and XY cross sections of 3D-SFM image at z positions of (i) 0.05 nm and (ii) 0.25 nm.

[1] 森垣 第64回コロイドおよび界面化学討論会 [2] 張他、第70回春季応物[17a-D519-2](2023)

加熱銅製ノズルを通して蒸着した Au(111)基板上のヘキサブロモトリフェニレン分子の STM 観察 Observation of hexabromotriphenylene deposited on Au(111) surface through a heated copper nozzle.

広島大学¹, 情通研機構², [○](M1)山口 真広¹, 坂上 弘之¹, 富成 征弘²,
田中 秀吉², 鈴木 仁¹

Hiroshima Univ.¹, NICT², [○]Masahiro Yamaguchi¹, Hiroyuki Sakaue¹, Yukihiro Tominari²,
Shukichi Tanaka², Hitoshi Suzuki¹

E-mail: m-yamaguchi@hiroshima-u.ac.jp

近年, 金属基板上でのウルマン反応を用いてグラフェンナノリボンやグラフェンナノメッシュなどのグラフェンナノ構造体が作製されている[1, 2]. この反応では, 加熱により触媒基板上で前駆体である芳香族ハロゲン化物からハロゲンが解離し, 分子同士が結合する. 基板には Au や Cu, Ag が用いられることが多い. 本グループにおいても, 三つ葉状の形であるヘキサブロモトリフェニレン(HBTP)分子が Au や Cu 上でメッシュ構造を形成することを報告してきた[2]. 特に Cu 表面は反応性が高いため, 蒸着した分子から臭素が加熱なしで解離することが観察されている. 本研究では反応性の高い Cu 表面への接触により変化させた HBTP 分子を Au(111)基板上に吸着させ, 走査トンネル顕微鏡(STM)を用いて観察した.

銅表面と分子を接触させるために, ヒーター線を巻いた, 内径 5.6 mm, 長さ 24 mm で円筒形状の銅製ノズルをクヌーセン(K)セルの前方に取り付けた. この蒸着装置を用いることで, 昇温した銅製ノズルを通して HBTP 分子($C_{18}H_6Br_6$)を Au(111)基板に蒸着した. 分子蒸着後の基板は 77K に冷却し超高真空下で STM を用いて観察した.

通常の K セルを用いて Au(111)基板上に蒸着した HBTP 分子の STM 像を Fig.1(a)に示す. 分子は過去の報告[2]と同様に約 1.2 nm 間隔の六方格子を形成していた. 一方, ノズル温度 477K で蒸着した分子の STM 像を Fig.1(b)に示す. A で示すように棒状構造が間隔約 0.5nm で平行に配列した集合構造が観察された. この棒状構造の長さは 0.8nm から 3.3nm で, 平均は 2.0 nm だった. この棒状構造が平行に配列した構造は, Au 基板上でアルカン分子が配列した構造[3]と似ており, 平均長は HBTP 分子と同じ 18 個の炭素を持つアルキル鎖の長さ約 2.2 nm と近い. これらのことは,

HBTP 分子が加熱された Cu 表面上でアルキル鎖に変化し, それらが基板上に配列したことを示唆している. また, 一部には HBTP 分子と同じ三つ葉状の構造(B)も観察され, これらは Cu 表面の影響を受けず K セルから直接 Au 基板上へ吸着したものと考えられる. 本研究の一部は JSPS 科研費 21K04844, 23K04536 の助成を受けた.

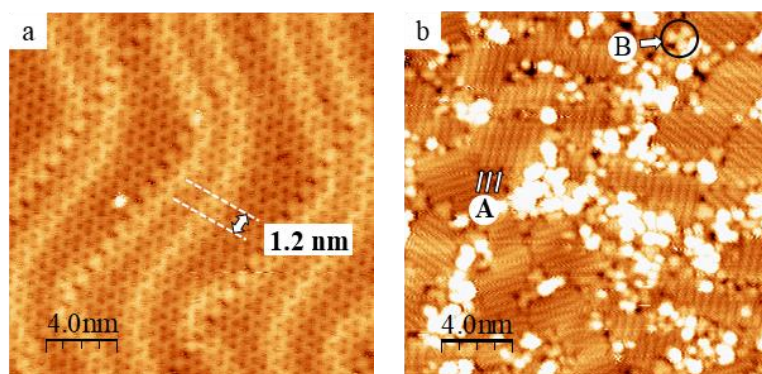


Figure 1: STM images of HBTP molecules deposited on Au(111).
(a) without the nozzle and (b) with the nozzle (477K).

[1] J. Cai, et al., *Nature* **466**, 470 (2010).

[2] Y. Nagatomo, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, SDDA16 (2020).

[3] H. Zhang, et al., *Chem. Eur. J.* **10**, 1415 (2004).

DPH-BTBT の 1 次元構造における HOMO と HOMO-1 の軌道混成

Hybridization of HOMO and HOMO-1 in One-Dimensional Monolayer of DPh-BTBT

筑波大¹, 京大², 和歌山大³

○小野裕太郎¹, 岩澤柁人¹, 鶴田諒平¹, 延山知弘², 小田将人³, 石井宏幸¹, 山田洋一¹

Univ. Tsukuba¹, Kyoto Univ.², Wakayama Univ.³

○Y. Ono¹, M. Iwasawa¹, R. Tsuruta¹, T. Nobeyama², M. Oda³, H. Ishii¹ and Y. Yamada¹

E-mail: s2430070@u.tsukuba.ac.jp

【緒言】近年、BTBT 系分子など高い移動度を有する有機半導体材料が開発されているが、その伝導機構には未解明な部分が多い。理論研究では一部の高移動度有機半導体において、最高占有分子軌道 HOMO と更に深い分子軌道が混成した特異的な伝導機構、mixed-orbital charge transport (MOCT)の存在が示唆されている[1][2]。本研究では BTBT 誘導体の一つである DPh-BTBT (Fig.1)の単分子層を形成し、占有軌道の電子状態を実験および計算の両面から検証した。

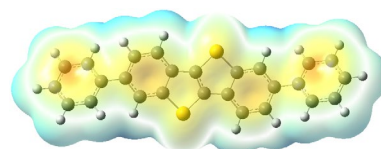


Fig.1 Electrostatic potential (ESP) of DPh-BTBT mapped on isosurface of electron density. Blue and red correspond to positive and negative potential.

【結果と考察】走査トンネル顕微鏡(STM)計測により、Ag(111)上に作製した DPh-BTBT 単層膜は蒸着量によって構造が低密度相から高密度相(Fig.2a)に変化することが分かった。高密度相では 2 種類の高さの分子が交互に並んでおり、それぞれ Face-on 配向と Edge-on 配向を行っていると考えられる。Fig.2b に高密度相の価電子帯の光電子スペクトルを示す。低密度相に対し高密度相では分子軌道のブロードニングが見られ、フィッティング解析から HOMO、HOMO-1 がそれぞれ 0.2 eV、0.3 eV 程度分裂していることが分かった。軌道分裂の起源を明らかにするため、単結晶構造を元に高密度相の分子列を模した構造を形成し、静電ポテンシャルおよび分子軌道の計算を行った。

Fig.3a に 4 分子列の静電ポテンシャルを示す。Edge-on 分子には正、Face-on 分子には負のポテンシャルが局在しており、分子配向によってポテンシャル分布に差があることが分かった。計算で求めた分子軌道のエネルギーは Edge-on 分子と Face-on 分子で異なり(Fig.3b)、光電子スペクトルを概ね再現した。2 種類の分子軌道のエネルギー差は、静電ポテンシャルの差から理解できる。このとき Edge-on 分子の HOMO と Face-on 分子の HOMO-1 がエネルギー的に接近しており、1 次元周期構造を用いたバンド計算ではこれらの混成が確認された。

【参考文献】 [1] Kuroda, Y. *et al.*, *J. J. Appl. Phys.* **2019**, 58, SIIB27. [2] Yu, C. *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **2022**, 144, 11159.

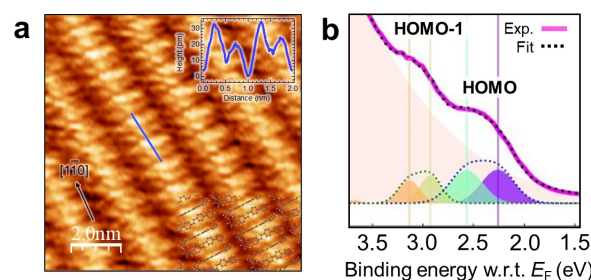


Fig.2 (a) STM image and (b) Photoelectron spectra of DPh-BTBT/Ag(111) in Dense phase.

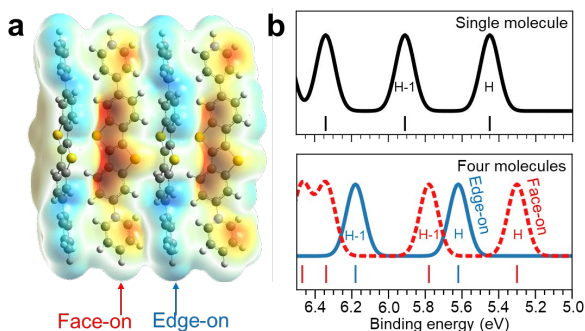


Fig.3 (a) ESP of row of four DPh-BTBTs. (b) Calculated DOS of single and row of DPh-BTBTs.

Negative Differential Resistance in Single-Molecule Junctions Based on Heteroepitaxial Spherical Au/Pt Nanogap Electrodes

Dongbao Yin¹, Miku Furushima², Haru Tanaka¹, Seiichiro Izawa¹, Tomoya Ono²,
Ryo Shintani³ and Yutaka Majima¹

¹Laboratory for Materials and Structures, Tokyo Institute of Technology

²Department of Electrical and Electronic Engineering, Graduate School of Engineering, Kobe University

³Division of Chemistry, Department of Materials Engineering Science,
Graduate School of Engineering Science, Osaka University
E-mail: yin.d.aa@m.titech.ac.jp

Single-molecule junctions have established a variety of functional quantum devices working based on the molecular orbitals of individual molecules^[1]. The single-molecule junctions exhibiting negative differential resistance (NDR) behaviors, characterized by a decrease in current with increasing voltage, have attracted considerable attention due to their potential application as ultra-fast resonant tunneling diodes. Thus, several pioneering studies have investigated the mechanisms behind this nonlinear NDR behavior through theoretical modeling and experimental evaluation^[2]. However, the peak-to-valley (PV) ratios of NDR observed in most single-molecule junctions are relatively small (< 10). The large-scale fabrication and integration of electronic devices also highlight a demand to create a platform for constructing solid-state single-molecule junctions.

Recently, we have developed heteroepitaxial spherical (HS)-Au/Pt nanogap electrodes (Figure 1a) prepared by electron-beam lithography (EBL) and self-termination electroless gold plating (ELGP)^[3]. Their molecular length gap separation, small radii, and robust thermal stability enable large-scale multiple fabrication of single-molecule junctions on a Si substrate using interested molecules.

Here, we report a pronounced NDR effect with a PV ratio of 30.1 (Figure 1b) on a single-molecule junction consisting of a π -conjugated quinoidal-fused oligosilole derivative, Si2 \times 2^[4], embedded between HS-Au/Pt nanogap electrodes. This NDR effect persists over a consecutive 180 current traces and showed stable temperature dependence between 9 K and 300 K^[5]. Density functional theory calculations under electric fields suggest that the NDR effect arises from bias-dependent resonant tunneling transport via the polarized highest occupied molecular orbital (HOMO). Our findings demonstrate a promising electrical platform for constructing functional quantum devices at the single-molecule level.

Acknowledgment: This study was supported by JST CREST (Grant Number JPMJCR22B4).

References

- [1] K. Moth-Poulsen, et al. *Chem. Soc. Rev.*, **2014**, 43, 7378–7411.
- [2] B. Xu, Y. Dubi, *J. Phys. Condens. Matter* **2015**, 27, 263202.
- [3] Y. Y. Choi, A. Kwon, and Y. Majima, *Appl. Phys. Express*, **2019**, 12, 125003.
- [4] N. Hamada, T. Tsuda, and R. Shintani, *Eur. J. Org. Chem.*, **2021**, 4824–4827.
- [5] D. Yin, M. Furushima, H. Tanaka, S. Izawa, T. Ono, R. Shintani, Y. Majima, *Adv. Electron. Mater.* **2024**, DOI: 10.1002/aelm.202400390.

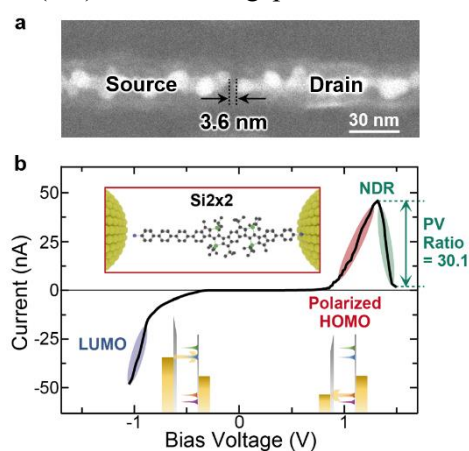


Figure 1. (a) SEM image of top view of HS-Au/Pt nanogap electrodes. (b) I_d - V_d characteristics of Si2 \times 2 single-molecule junctions with a pronounced NDR effect.

原子層磁石観察に向けた qPlus AFM/MFM 開発 (1)

Development of qPlus AFM/MFM for imaging layered magnets (1)

千葉大院工¹, カールスルーエ工科大物², 高知工大³, 京大院工⁴, 千葉大分子キラ研⁵

赤松 瞬¹, 市川 稜¹, 石井 榛¹, Wulf Wulfhekel², Amir-Abbas Haghighirad²,

益井 絵美里³, 稲見 栄一³, 西脇 悠人⁴, 時任 秀慈⁴, 一井 崇⁴, 山田 豊和^{1,5}

Chiba Univ.¹, KIT², Kochi Univ. Tech.³, Kyoto Univ.⁴, Chiba Univ. Chiral. Res.⁵

Shun Akamatsu¹, Ryo Ichikawa¹, Haruki Ishii¹, Wulf Wulfhekel², Amir-Abbas Haghighirad²,

Emiri Masui³, Eiichi Inami³, Yuto Nishiwaki⁴, Shuji Tokito⁴, Takashi Ichii⁴, Toyo Kazu Yamada^{1,5}

E-mail: toyoyamada@faculty.chiba-u.jp

グラフェンのように原子一層を剥離できる磁石が“原子層磁石”である。新たな固体量子ビットやスピントロニクス材料として注目されている。本研究では、原子層強磁性体の中で最も高いキュリー温度(約 200 K)を有する Fe_3GeTe_2 (FGT) を用いる [1]。二次元原子層のためトポロジカル効果によるスキルミオン相の発現も報告されている [2]。磁性層がカルコゲン元素でその上下を挟まれ保護されているため安定とされる。

原子レベルで薄く小さな磁石の磁気構造を解明する手法の一つに、スピン偏極走査トンネル顕微鏡及び走査トンネル分光法 (SP-STM/STS) がある [3]。我々はこれまで、SP-STM を用いて超高真空・極低温環境にて磁性薄膜や原子・分子磁石の研究を行ってきた [4]。しかし、この STM による原子層磁石の研究では注意が必要なことが分かってきた。

原子層磁石は通常、真空中での剥離で清浄な表面を得る。ところが、剥離具合により、表面に“しわ”が生じたり、めくれたりする。STM は“トンネル電流”を検出するため、“しわ”や“めくれ”により電気伝導が局所的に極端に下がり、探針が試料に接触することが頻繁に起こる。STM での表面形状測定は困難なことがある。

一方で、「力」を検出する原子間力顕微鏡 (AFM) では、伝導が不安定化しても表面形状を観察できる。そこで、真空・低温環境での qPlus センサーによる磁気力顕微鏡 (MFM) の開発を行う。自作 STM を改造し qPlus MFM を自主開発している。(1) qPlus 固定、(2) 配線、(3) 自作プリアンプ、(4) Nanonis 制御系との接続、(5) 磁性探針の開発について、FGT 試料測定状況と合わせて報告する。

参考文献:

[1] Yang *et al.*, **2D Mater.** 9, (2022) 025022.

[2] Birch *et al.*, **Nature Communications** 13, (2022) 3035.

[3] T. K. Yamada, *et al.*, **Microscopy Research and Technique**, 66, (2005) 93.

[4] T. K. Yamada *et al.*, **Journal of Materials Chemistry C**, 12, (2024) 874.

STM 誘起発光を用いたキラル PTCDI 分子の光学活性評価

Evaluation of optical activity of chiral PTCDI molecules by STM-induced light emission

阪大院工¹, 和歌山大システム工², [○](M2)春名泰成¹, 服部卓磨¹, 松羅翔大²,

齋藤彰¹, 大須賀秀次², 桑原裕司¹

Osaka Univ.¹, Wakayama Univ.², (M2) Taisei Haruna¹, Takuma Hattori¹, Shota Matsura²,

Akira Saito¹, Hideji Osuga², Yuji Kuwahara¹

生体を構成する分子はすべてキラリティを有し、片方の光学異性体(エナンチオマー)のみを許容する。この「ホモキラリティ」の性質は生体が分子キラリティを厳密に認識していることを示している。キラル認識機構の詳細を解明するためには、ナノスケールでの物性評価が不可欠である。^[1]両エナンチオマーは、ほとんどの物理的・化学的性質が同一であるが、円二色性や旋光分散といった光学活性のみが異なっている。しかしながら従来の光学活性の測定は、光の回折限界によりマクロスケールに限られていた。^[2]我々は、これまで走査トンネル顕微鏡(STM)によるトンネル電流誘起発光(STM-LE)によって、ナノスケールでの光学活性測定を行ってきた。この手法は、STM による高い空間分解能の形状像と、左右円偏光に分離した STM 発光強度分布を同時に取得できるため、分子スケールでの光学活性評価が可能である。^[3]

本研究では、キラル分子である binaphthyl-perylenetetracarboxylic dianhydride(以下 Chiral PTCDI) (Fig1)とアキラル分子である 3,4,9,10-perylenedicarboximide(以下 PTCDI-C8) を研究対象とした。すでに、Chiral PTCDI に対する STM-LE 測定で光学非対称性を単分子レベルで評価することが可能になっている。しかしながら、探針先端の形状に起因するプラズモン発光の光学非対称性の影響を十分に排除できていないことが課題となっている。そこで本研究では、アキラルな PTCDI-C8 分子を用いて STM-LE 測定を行い、Chiral PTCDI 分子からの STM 発光の光学非対称性を再評価した。

実験では、PTCDI-C8 分子を、NiAl(110)基板上に作製した酸化膜上に蒸着し、STM 像を取得した。まず、STM 像から計測された分子サイズは実際の分子サイズとほぼ同じであった。また PTCDI-C8 分子は Chiral PTCDI 分子に比べ、幅と高さが明らかに小さな輝点として観察された。次に、左右円偏光の発光強度分布の強度差から光学活性を評価したところ、PTCDI-C8 単分子は Chiral PTCDI 分子に比べ、明らかな光学活性を示さなかった。当日は、Chiral PTCDI 分子と PTCDI-C8 分子を共吸着した系を用いた結果についても、議論する。

参考文献

- [1] Kelly, S. M. *et al.*, Biochim. Biophys. Acta. **1751**, 119 (2005).
- [2] Kakkanattu A *et al.*, Opt Express. 2021 Apr 12;29(8):12543-12579.
- [3] P. Krukowski *et al.*, J. Phys. Chem. C **120**, 3964 (2016).

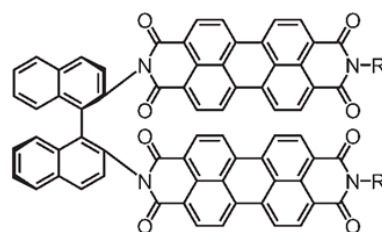


Fig1 Structure of Chiral PTCDI

二次元ハニカム格子磁石の表面合成

On-Surface Synthesis of Two-Dimensional Honeycomb Lattice Magnet

千葉大院工¹ °山田 豊和¹, 石井 榛¹

Chiba Univ.¹, °Toyo Kazu Yamada¹, Haruki Ishii²

E-mail: toyoyamada@faculty.chiba-u.jp

物質表面・界面では空間反転対称性が破れラシュバ分裂が生じる。また磁性物質による磁場があれば時間反転対称性も崩れる。さらに、二次元ハニカム格子内の磁性原子は磁気スラストレーションにより量子スピン液体のような特異な磁気構造を持つ事が示唆される。このような二次元磁気格子は、これまで原子層物質を始め主としてバルク結晶合成で開発されてきた。

我々は、このような二次元量子スピン物質を、基板表面上に有機分子と磁性原子を蒸着し真空エピタキシャル成膜法を用いて実現することを目指している。基板原子、磁性原子、有機分子の三者は融合するのか、それとも分離成長するのか慎重に研究を進めてきた [1-4]。これら技術の確立は超高密度媒体の量産化に向け重要である。

実験は全て四台の超高真空・走査トンネル顕微鏡 (STM) 装置を用いて低温から室温で実施した。基板として原子テラス幅 50 nm 以上を持つ清浄な Cu(111)表面を使用した。

(a) 研究当初、有機素子に広く使用されるフタロシアン分子やポルフィリン分子を用いた。これらに、一個の磁性原子を吸着した。その結果、磁性原子は有機分子内に取れこまれず、分子下で凝集した [1]。単純に、有機分子と磁性原子を吸着しても二次元格子は実現しない事が分かった。

(b) 有機分子で磁性原子を捉えるため“トラップ”機能をもつクラウンエーテル(BrCR)分子を用いた。Cu(111)上で BrCR 分子に磁性原子を吸着した。各 BrCR 分子は磁性原子を数個ずつトラップし磁性ナノ粒子化した。しかし、ハニカム格子にはならなかった [2,3]。

(c) 二次元格子を実現するには、分子や原子同士が表面上で二次元的に結合しなくてはならない。そこで、臭素(Br)を終端に持つ前駆体分子を表面合成し共有結合有機構造体 (COF) を作製し活用した。“ウルマン反応”を利用し数十 nm サイズの二次元ハニカム格子を完成した。これに磁性原子を吸着した。やはり磁性原子は COF とは結合せず、格子の穴の中で凝集し均一な大きさ (約 1.5 nm) の磁性金属ナノ粒子は作製できた [4]。磁性ナノ粒子のハニカム格子実現への道は拓けた。

(d) 二次元ハニカム格子磁石を実現するには、前駆体分子自身に工夫を凝らす必要がある。一次元有機分子の終端に磁性原子が優先的に吸着する“しかけ”を施した。その結果、基板表面全体に均一に広がる二次元ハニカム格子を作製できた。この格子は、基板原子ステップをまたぐように全表面に広がっていた。

参考文献: [1] E. Inami, *et al.*, **The Journal of Physical Chemistry C** 124, 3621 (2020). [2] T. K. Yamada, *et al.*, **Journal of Materials Chemistry C**, 12, 874 (2024). [3] T. K. Yamada *et al.*, **Nanoscale Horizons**, 9, 718 (2024). [4] T. K. Yamada *et al.*, **The Journal of Physical Chemistry C**, 128, 1477 (2024).

液中 AFM による半導体ウェーハ絶縁膜表面の吸着力計測

Adhesion Force Measurement at Surfaces of an Insulation Film on Semiconductor

Wafer by AFM in Liquids

金沢大¹, 荏原製作所², [○]岡 大輝¹, 浅野 吉彦¹, 五十嵐 陽彦¹, 松元 亨介¹, 宮田 一輝¹,
宇野 恵², 高東 智佳子², 福間 剛士¹

Kanazawa Univ.¹, EBARA Corp.², [○]Daiki Oka¹, Yoshihiko Asano¹, Takahiko Ikarashi¹,

Kyosuke Matsumoto¹, Kazuki Miyata¹, Megumi Uno², Chikako Takatoh², Takeshi Fukuma¹

E-mail: okguitar@stu.kanazawa-u.ac.jp

急速な発展を続ける半導体集積化技術を支える重要な要素の一つに、研磨・洗浄工程がある。この工程では、ナノ砥粒を含むスラリー液を流しながら研磨パッドで表面平坦化したのち、洗浄液中で PVA ブラシを回転させながらウェーハに押し付け、砥粒や研磨屑を除去する。ただし、そのブラシ押し付け力や洗浄液組成などの条件は経験的なパラメータによるものが多く、必ずしも最適化されているとは言い難い。より効果的に砥粒を除去し半導体製造の歩留りを向上させるためには、砥粒の吸着脱離や洗浄のメカニズムをナノスケールで解明することが望まれている。これを達成するため、我々はこれまでに液中 AFM による PVA ブラシ表面の構造・物性評価を行ってきた。これにより、溶液中において PVA ブラシ表面の高分子が膨潤し、その膨潤度と砥粒-PVA ブラシ表面間の吸着力の間に強い相関があることを示唆する結果が得られている。その一方で、ウェーハ表面から砥粒を引き離すために要する力については未解明のまま残されている。

これを解決するため、Si ウェーハ上に形成された絶縁膜（テトラエトキシシラン；TEOS）の表面にて、PVA ブラシの場合と同様の手法で吸着力を計測する。ただし、TEOS 表面を大気暴露すると、時間経過とともにカーボン不純物が表面に堆積し、正確に TEOS 表面における吸着力を評価することが困難である（図 1a）。本研究ではプラズマクリーニングと KOH エッチングで不純物除去し、確実に TEOS が露出する表面処理手法を確立した（図 1b）。さらに、この表面上で、実際の砥粒の材質と大きさを模した先端直径 50 nm 程度の SiO₂ 探針を作製し、それによりフォースカーブを測定し、吸着力を定量できることを確認した（図 2）。今後は、様々な溶液条件や測定条件でフォースマッピングを行い、その結果を PVA ブラシ上での測定結果と比較し、ウェーハ上からの砥粒除去機構をナノレベルで解明する。

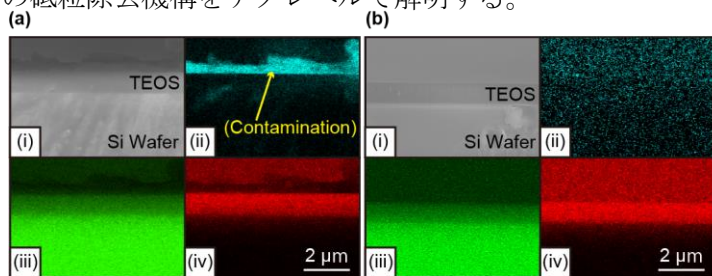


Fig. 1: Cross sections of samples (a) without and (b) with surface processing. (i) SEM image, and EDS elemental mapping images of (ii) C, (iii) Si, and (iv) O.

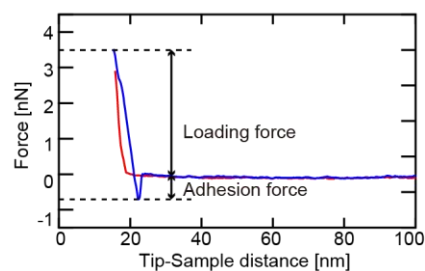


Fig. 2: An example force curve obtained at processed surface of TEOS.

全固体電池における活物質間接触と電池容量に関する 3次元シミュレーション解析

3D Simulation of Inter-Particle Contact and Battery Capacity in All-Solid-State Batteries

産総研 °前田 泰, 山岸 裕史, 蒲生 浩忠

AIST, °Yasushi Maeda, Yuji Yamagishi, Hirotada Gamo

E-mail: y-maeda@aist.go.jp

1. 研究背景

我々はこれまで、全固体電池を対象として走査型広がり抵抗顕微鏡(SSRM)による解析を行い、SSRMで測定される局所抵抗は活物質粒子間の電氣的接触(以下、粒子間接触と表記)状態を反映することを明らかにした[1]。この結果は、SSRMが全固体電池の解析に有効であることを示す一方で、粒子間接触と電池容量との相関に関するメカニズムは明確ではなかった。そこで本研究では、3次元モデル構造を用いた充放電シミュレーションにより粒子間接触と電池容量との関係調べることで、どのような条件でSSRM解析が有効であることを明らかにすることを試みた。

2. 実験方法

粒子間接触を正確に求めるために、球充填構造によるシミュレーションを実施した。シミュレーションは3次元シミュレーションソフト GeoDict [2]の BatteryDict モジュールを用いて行った。GeoDict上で球充填構造に固体電解質を充填し、球粒子を $\text{Li}(\text{Ni}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3})\text{O}_2$ 活物質、固体電解質を $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$ 固体電解質として、放電カーブの計算を行った。

3. 結果及び考察

図1は活物質粒子の体積分率が50%のときの放電端での活物質粒子内の(a)Li濃度分布と(b)電流密度分布である(活物質粒子以外是非表示)。図中の白矢印の位置で、Li濃度に大きな変化がみられ、同じ位置で電流の集中もみられる。これは、粒子間接触が小さいと電流集中による過電圧のためLiの利用率が低下し、結果として電池容量が減少することを示唆している。

以上より、活物質を通る電子伝導が律速となる場合、粒子間接触と電池容量とに相関があるという結果が得られた。SSRMは粒子間の電氣的接触状態を評価することができる。従って、SSRMは全固体電池の重要な解析ツールになり得ることが示唆された。

謝辞

本研究は NEDO 委託事業「次世代全固体蓄電池材料の評価・基盤技術開発 (SOLiD-Next, JPNP23005)」により実施された。

References

- [1] H. Gamo, et al., *J. Mater. Chem. A*, in press.
- [2] J. Park, et al., *Adv. Energy Mater.* **10** (2020) 2001563.

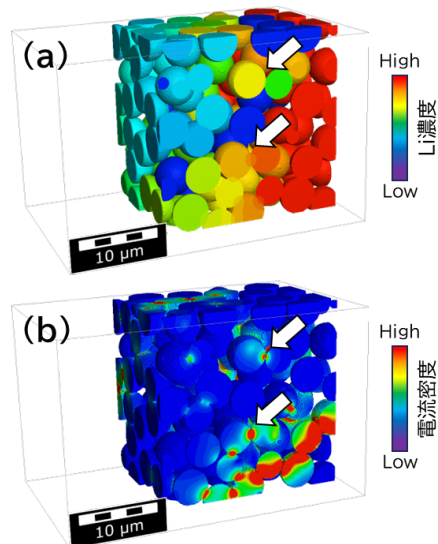


Fig. 1 (a) Li concentration distribution and (b) current density distribution at the end of discharge.

基準電位制御法を導入した時間分解静電引力顕微鏡による 太陽電池材料評価

Characterization of solar cell materials using

time-resolved electrostatic force microscopy under base-bias-level control

東大 生研¹/ナノ量子機構² ○(M2) 竹本 開太¹, 佐藤 捷¹, 石橋 亮太¹, 高橋 琢二^{1,2}

¹IIS / ²NanoQuine, Univ. Tokyo, [○]Kaita Takemoto¹, Jo Sato¹, Ryota Ishibashi¹ and Takuji Takahashi^{1,2}

E-mail: kaita@iis.u-tokyo.ac.jp

静電引力顕微鏡 (EFM) では、電荷の生成・再結合、輸送などの電荷ダイナミクスの観察が期待されるが、一般には、印加交流電圧に応じた静電引力の変動成分を抽出するため、ロックインアンプなどの計測器によって時間分解能はミリ秒オーダーに律速されてしまう。我々は、マイクロ秒程度の高い時間分解能を実現することを目指して、元々はケルビンプローブフォース顕微鏡 (KFM) での空間分解能向上のために考案した間欠バイアス印加法[1]をポンププローブ法[2]と組み合わせることで、EFM での時間分解計測の実現を図ってきた[3]。一方で、EFM では、外部電圧が零の条件でも接触電位差 (CPD) による静電引力が生じるなど、計測時の電圧の基準が明確ではなかった。そこで、EFM のための間欠バイアスとは独立した別の間欠バイアスを用いた KFM 動作によって CPD の補正を並行して行うことで、探針と試料の真空準位を一致させた擬似的な中性状態を電位の基準とした静電引力計測を可能とする時間分解 EFM を提案し、定点上にて基準電位を制御した静電引力の時間分解計測が可能であることを実際に確認している[4]。本研究では、同手法を微結晶系太陽電池材料 (CIGSSe [Cu(In,Ga)(S,Se)₂]) に適用して、EFM 信号画像や時間波形の観測を通じて同手法の有効性のさらなる検証を行った。

本研究で使用したカンチレバーのバネ定数は約 2 N/m、共振周波数は約 82 kHz であった。EFM 用プローブパルス電圧 (パルス幅 2μsec) と KFM 用プローブパルス電圧の振幅変調周波数は、両信号の S/N 比を向上させるために、カンチレバーの共振周波数に近い 92kHz および 76kHz とした。また、矩形のポンプ電圧を CIGSSe 試料に印加し、そのポンプパルスのほぼ中央のタイミングでの EFM 信号を形状像 (Fig. 1) とともに画像化したものが Fig. 2 である。同図より、結晶粒の縁付近での静電引力信号の低下が確認された。一方、結晶粒の縁付近と結晶粒内部それぞれの定点上で静電引力信号の時間変化を計測した結果 (Fig. 3) から、同様の傾向が確認された。今後は、EFM 画像の時間変化や様々な波形のポンプ電圧に対する応答などを観測していく予定である。

本測定に用いた試料は出光興産株式会社から提供していただいた。

[1] S. Ono, et al., *J. Appl. Phys.*, **45**, 1931 (2006).

[2] J. Murawski, et al., *J. Appl. Phys.*, **118**, 145302 (2015).

[3] R. Ishibashi, et al., *ICSPM28*, S8-1, Dec. (2020).

[4] J. Sato, et al., *Meas. Sci. Technol.*, **35**, (2024)

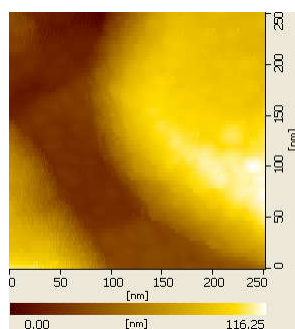


Fig. 1 Topographic image.

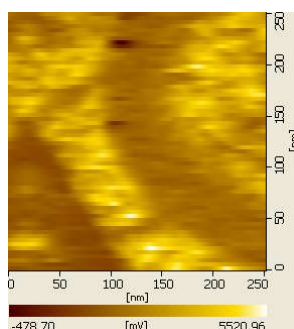


Fig. 2 EFM signal image.

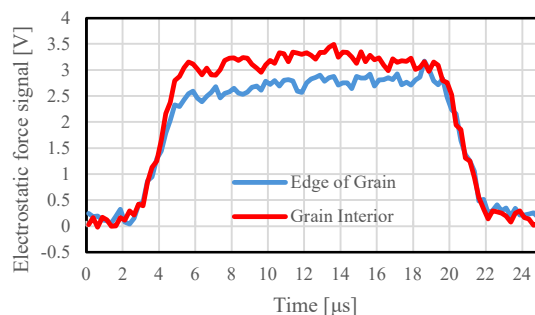


Fig. 3 Waveforms of EFM signal observed on edge of grain and grain interior.

ヘテロダインポンププローブ ケルビンプローブフォース顕微鏡による 有機薄膜トランジスタのキャリアダイナミクス評価 Investigation of Carrier Dynamics in Organic Thin-Film Transistors Using Heterodyne Pump-Probe Kelvin-probe Force Microscopy

京大工¹, °有長 一輝¹, 小林 圭¹

Dept. of Electronic Sci. & Eng., Kyoto Univ.¹ °Kazuki Arinaga¹, Kei Kobayashi¹

E-mail: arinaga.kazuki.38r@st.kyoto-u.ac.jp

有機薄膜トランジスタ (Organic-thin-film-transistor : OTFT) は、無機半導体にはない柔軟性や軽量性、製作プロセスの容易性、生体との親和性といった特徴から様々な分野でその将来性が期待されている。しかしながら、OTFT には、有機/無機界面における注入障壁やグレイン境界のトラップによりキャリア移動が律速されるという課題が存在する。その解決のためには OTFT 内のキャリア挙動を解明し、律速要因を特定することが肝要である。われわれは、高い空間分解能での電位測定が可能であるケルビンプローブフォース顕微鏡 (Kelvin-probe Force Microscopy: KFM) をベースにより高い時間分解能での測定が可能なポンププローブ法を組み合わせたポンププローブ KFM (pump-probe KFM : pp-KFM) [1,2]を採用し、OTFT のキャリア分布の変化をマイクロ秒オーダーで可視化し電位の時間変化からキャリア挙動の解明を試みている。[3]

前回の講演[3]では pp-KFM により OTFT におけるキャリアの注入・排出過程を評価した結果について報告したが(fig.1)、pp-KFM 像に印加した交流電圧の変調周波数(ω_m)の2倍高周波数成分($2\omega_m$)由来と考えられる周期的なノイズが現れていたため、微小構造と電気特性の相関を解明するには至らなかった。そこで今回は KFM に含まれるノイズ低減に有効であると考えられるヘテロダイン KFM [4]を組み合わせたヘテロダイン pp-KFM による OTFT 測定を行った。

ヘテロダイン KFM ではカンチレバーの共振周波数の2倍程度の周波数を持つ交流を変調バイアスとして用いることで、MHz 帯に近い周波数で変調するため、原理的には前述の問題は生じない。

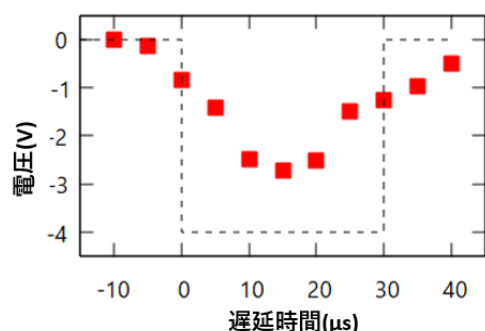


Fig.1 Surface potential of the OTFT channel as a function of Δt [3]

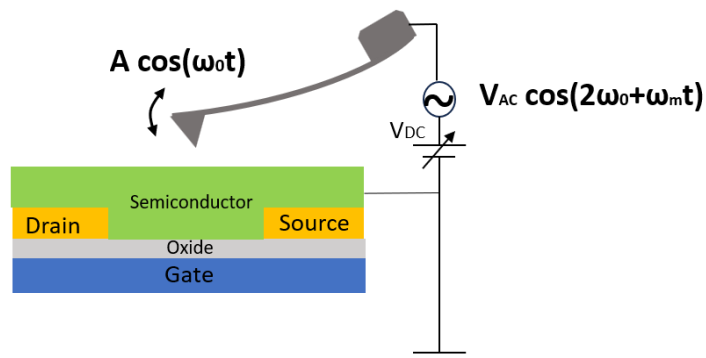


Fig.2 schematic of heterodyne KFM

[1] G. E. Bridges, R. A. Said, M. Mittal, and D. J. Thomson, *Rev. Sci. Instrum.* **65**, 3378 (1994)

[2] J. Murawski, T. Graupner, P. Milde, R. Raupach, U. Zerweck-Trogisch, and L.M. Eng, *J. Appl. Phys.* **118**, 154302 (2015).

[3] 有長, 小林, 2023 年 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 22a-P02-11

[4] Y. Sugawara, *Journal of Physics Communications*, **4**, 075015 (2020)

PEDOT-PSS network layers for neuromorphic physical computing

Osaka Univ.¹, Rikkyo Univ.² °Meien Sou¹, Yuma Murano¹, Dock-Chil Che¹,

Syusaku Nagano², Takuya Matsumoto¹

E-mail: soum20@chem.sci.osaka-u.ac.jp

[Introduction] PEDOT is a promising conducting polymer that has excellent electrical conductivity and optoelectronic properties. Although LB technique is commonly used to fabricate the highly ordered films, PEDOT cannot be applied to this technique due to the water-soluble molecules. Yang et al. [1] have reported the fabrication of multilayer (5–80 layers) thin films of the conductive polymer PEDOT-PSS with octadecylamine (ODA) using the LB method, and the nonlinear I-V characteristics has been observed. In this study, we report the successful fabrication of a PEDOT-PSS network with ODA using the LB technique in order to clarify the characteristics of conduction mechanism.

[Experimental] Several kinds of PEDOT-PSS dissolve the water in the LB trough. After dissolving PEDOT-PSS, ODA (0.5×10^{-3} mol/L) of 10 μ L is dropped on the trough. After 1 hour incubation, the π -A curve was measured. It was found that the number of amino groups in ODA is equal to that of the sulfonic groups in PEDOT/PSS when the concentration of 3×10^{-5} volume percent. We define that this ratio is 1:1.

[Results and Discussion] Fig.1 shows the π -A curve observed varying the concentration of PEDOT-PSS with the ODA. The purple line shows the π -A curve when the ODA only. As seen the figure, the pressure does not increase even at the smallest area. The brown line shows the π -A curve when the PEDOT-PSS of 3×10^{-4} volume percent without ODA. This π -A curve shows the small enhancement at the small area. However, the

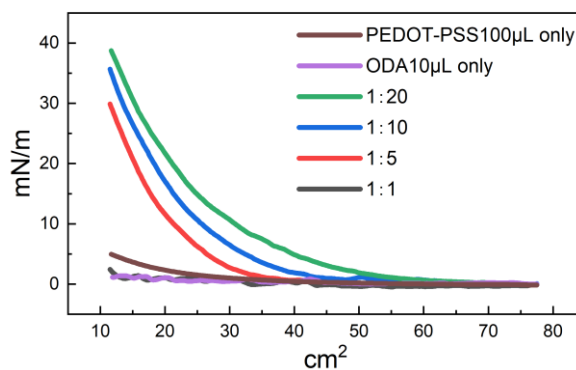


Fig.1. Surface Pressure of each ratio of ODA and PEDOT-PSS

pronounce surface pressure enhancement was observed if ODA dropped on the water-air interface. It was found that as increases the concentration of PEDOT-PSS, the surface pressure increases. This result suggests that the PEDOT-PSS combined with the ODA at the water-air interface due to the ionic bonding of the sulfonic groups with the amino group. Although the preliminary result, non-linear I-V characteristic curve was observed for the PEDOT-PSS network (1:20) fabricated by the LB method at the surface pressure of 25 mN/m. We will show discuss the detail results for I-V characteristics with the AFM images of fabricated PEDOT-PSS network at the presentation.

[1] Yajie Yang et al, Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects 302, 157 (2007); Yajie Yang et al., Thin Solid Films 516, 1191 (2008)

AFM observation of microparticle latex film under tensile strain

○Feng-Yueh Chan¹, Natsuki Watanabe¹, Yuichiro Nishizawa², Yuma Sasaki²,
Daisuke Suzuki², Takayuki Uchihashi^{1,3}

¹Dept. of Physics, Nagoya Univ., ²Grad. Sch. of Environmental, Life, Natural Sci. & Tech., Okayama Univ., ³ExCELLS

E-mail: fychan@nagoya-u.jp

The behavior of materials under mechanical stress is a crucial consideration when designing new materials for a sustainable environment. Thus, the emergence of waterborne microparticle latex films has garnered significant attention due to their outstanding mechanical stability and environmental sustainability¹. Although macro-scale testing devices have advanced our understanding of latex films, the lack of microscopic observation hinders our comprehension of their breakage mechanisms, potentially limiting further improvements. Atomic force microscopy (AFM) is widely used in materials and surface science due to its exceptional spatial resolution and flexible observation conditions. In this study, we incorporate a uniaxial stretching device into a tip-scan type AFM² to demonstrate its applicability through the observations of polymeric microparticle latex films under various strains up to 60%. The results reveal that the latex film experiences a variety of transformations under applied strain, including particle deformation, interparticle separation, and domain rearrangement. These behaviors suggest that the mechanical properties of the latex film are not only complex but can also be optimized during the manufacturing process. This insight opens up new avenues for tailoring material performance to achieve various objectives.

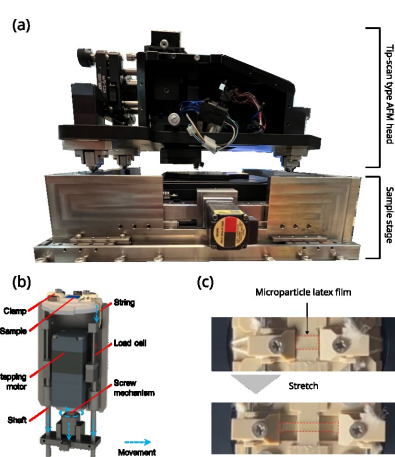


Fig. 1 (a) Photo of developed AFM. (b) Rendering of the stretching device. (c) Stretching motion of (b).

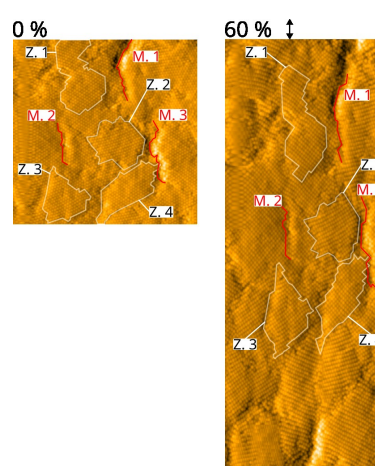


Fig. 2 Comparison of latex film surface under 0% and 60% strain.

References

- ¹ Y. Sasaki et al., *Langmuir*, **39** (2023), 9262-9272
- ² F.-Y. Chan et al., *Rev. Sci. Instrum.* **93**, 113703 (2022).

原子間力顕微鏡による単一椀状分子の機械的構造反転

Mechanically Induced Structural Inversion of Single Bowl Molecule

Investigated by Atomic Force Microscope

東大新領域¹, 阪大院工² ○岩田 孝太¹, 久能 欄丸², 濱田 幾太郎², 櫻井 英博²,
杉本 宜昭¹Univ. of Tokyo¹, Osaka Univ.², °Kota Iwata¹, Ranmaru Kuno², Ikutaro Hamada², Hidehiro Sakurai²,
Yoshiaki Sugimoto¹

E-mail: kiwata@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

物質に加えられる引張応力や圧縮応力などの機械的な刺激は化学反応を引き起こす場合があることが知られている。このような機械的刺激によって引き起こされる化学反応は「メカノケミストリー」と呼ばれ注目を集めている。これまでのメカノケミストリーは、ボールミルや材料の引っ張りなどの手法で研究が行われてきた。近年では、走査型トンネル顕微鏡(STM)や原子間力顕微鏡(AFM)を用いることで、基板表面に吸着した有機分子の化学反応を単一分子スケールで研究することが可能になっており、様々な化学反応が単分子レベルで調べられてきている。しかし、単一分子レベルでのメカノケミストリーと言える探針からの機械的刺激による分子構造の変化の報告例はごくわずかである[1-3]。

本研究では、スマネン単分子の構造変化を AFM 探針からの力刺激によって引き起こした。スマネンは Fig. (a)に示すように椀状の構造を持つ分子であり、AFM 探針を近づけて力を加えることで構造反転が起こると予想される。実験は qPlus 型 AFM/STM を用いて 5 K の超高真空中で行った。Figure (b)に Au(111)上に作成したスマネン単層膜の高分解能 AFM 像を示す。椀が真空側を向いた bowl-up と基板側を向いた bowl-down が 2 : 1 の割合で周期的に並んだ構造を作っており、先行研究の Au(111)上のスマネン単層膜[3]とは異なった構造が得られた。次に bowl-down 上に探針を近づけて分子に斥力を印加したところ、bowl-up への構造変化が観察された。この過程に探針試料間にバイアス電圧を印加していないため、構造変化は探針から印加された斥力によって引き起こされたと考えられる。理論計算の結果とともに詳細な反転の機構について報告する。

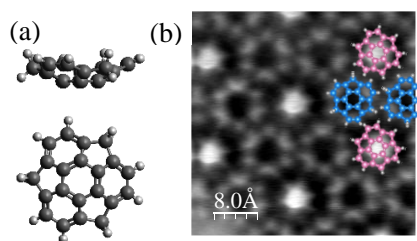


Figure (a) Side and top views of sumanene. Black and white spheres represent C and H atoms. (b) High resolution AFM image of the sumanene layer. Positions of bowl-up (blue) and -down (pink) sumanenes determined by the AFM image are partially overlaid.

[1] J. N. Ladentjin et al., Nat. Chem. 8, 935 (2016). [2] A. Ishii et al., Chem. Sci. 12, 13301 (2021). [3] S. Fujii et al., J. Am. Chem. Soc. 138, 12142 (2016).

σ -非局在系を有する分子接合の電荷輸送特性

Charge Transport Properties of Molecular Junctions with σ -Delocalized Systems

東工大¹, 埼玉大² [○]藤井 慎太郎¹, 瀬古 紗弥², 田中 泰地², 吉原 勇輝¹, 古川 俊輔²,
西野 智昭¹, 斎藤 雅一²

Tokyo Tech.¹, Saitama Univ.², [○]Shintaro Fujii¹, Saya Seko², Taichi Tanaka², Yuki Yoshihara¹,
Shunsuke Furukawa², Tomoaki Nishino¹, Masaichi Saito²

E-mail: fujii.s.af@m.titech.ac.jp

近年の技術進歩により、分子レベルにおける分子接合の輸送特性研究が盛んに行われている。これまで、高い電気伝導性を示す分子接合を戦略的に構築する上で、導電性の π -共役分子骨格の使用は不可欠であると考えられてきた。しかし、従来の π -共役系のみには頼ることは、分子接合の構造的な多様性を活用するには不十分であると考えられる。有機化学の分野では、 σ -軌道が非結合原子上に非局在化した σ -非局在化系が π -非局在化系を補完する存在として知られている (図 1a)。 π -非局在化系では、分子接合の電荷輸送方向は p 軌道に対して垂直であるが、 σ -非局在化系では p 軌道は電荷輸送方向に平行に並ぶ。 σ -非局在系は分子接合における電荷輸送経路を新たに設計する新たな機会を提供し、有機エレクトロニクスの研究分野の発展を後押しすることが期待される。 π -非局在系を持つ単分子の電荷輸送は長い間注目され、研究されてきたが、 σ -非局在系を持つ分子接合はほとんど研究されていない。そこで、本研究ではベンゼン環上に 6 つのセレン原子が環状に配置された σ -非局在化系 (図 1b) を持つ単分子接合の電荷輸送を Break Junction 法を用いて明らかにすることを目的とした。

電気計測および熱電計測の結果、 σ -非局在系を持つ分子接合は、従来の π -非局在系を持つ分子と比較して、約 $10^{-2} G_0$ (ここで $G_0 = 77.5 \mu\text{S}$ は電気伝導度の量子化単位) の高い電気伝導度と、約 $50 \mu\text{V K}^{-1}$ の比較的大きな熱起電力を示すことが明らかになった。本研究は、これまでほとんど研究されてこなかった σ -非局在系を有する分子接合の電荷輸送の理解を促進し、 σ -非局在軌道を用いた単分子伝導体の設計に新たな洞察をもたらすものと考えられる。

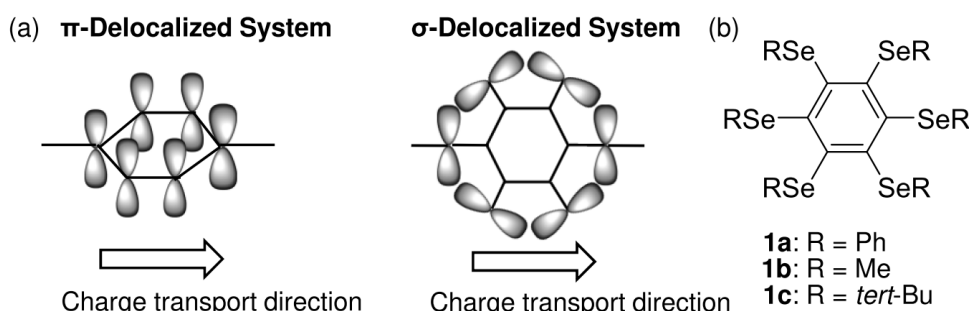


Fig. 1 (a) Schematic illustration of charge transport through π - and σ -delocalized systems. (b) Chemical structures of molecules used for the present study.

単一分子架橋系の整流特性の第一原理計算による研究

First-principles study of rectification properties of a single molecule cross-linking system

神戸大工¹ °古島 弥来¹, 植本 光治¹, 小野 倫也¹

Kobe Univ.¹, °Miku Furushima¹, Mitsuharu Uemoto¹, Tomoya Ono¹

E-mail: furushima@eedept.kobe-u.ac.jp

〔背景〕 単一の分子を電子デバイスの素子として用いる技術、分子エレクトロニクスに近年注目が集まっている[1]。我々は図 1 に示されるような Si₂x₂ 骨格を持つπ共役系分子が電極間に架橋されている系について、整流効果やトランジスタ実現の可能性の研究に取り組んでいる[2]。

Si₂x₂-Bph-Bph 分子 (図 1) の架橋系は電氣的整流効果を示すことが Tsuchihata らによって示された[3]。左右対称な系は理論上整流効果を示さないため、整流性は何らかの非対称性に起因する。

我々は、左右の電極と分子の結合様式の違い (共有結合とファンデルワールス結合など) が電子状態の非対称性を生むことを理論計算により示した[4]。本研究では、電極に電圧を印加したときの伝導特性を密度汎函数理論ベース

の第一原理計算によって求め、整流効果の起源を解明することを目的とした。

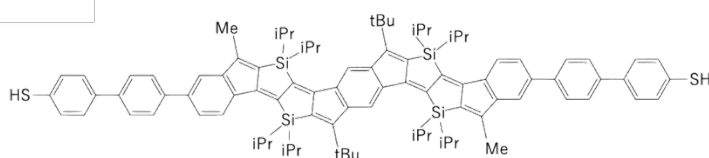


Fig. 1. A chemical formula of Si₂x₂-Bph-Bph molecule.

〔手法〕 Vienna *ab initio* simulation

package により、電極間の分子の左右非対称な準安定架橋構造を 2 種類求めた。次に、実空間差分法[5]によりそれらの電子状態と、電極間の電圧依存伝導特性を計算した。

〔結果〕 求めた 2 種類の準安定架橋構造は図 2 の通りとなった。一方は電極に対して垂直に、もう一方は斜めに架橋している。双方ともに片側で S 原子と Au 電極が共有結合し、もう片側では弱い結合を示した。電極間電圧依存の伝導特性を報告する。

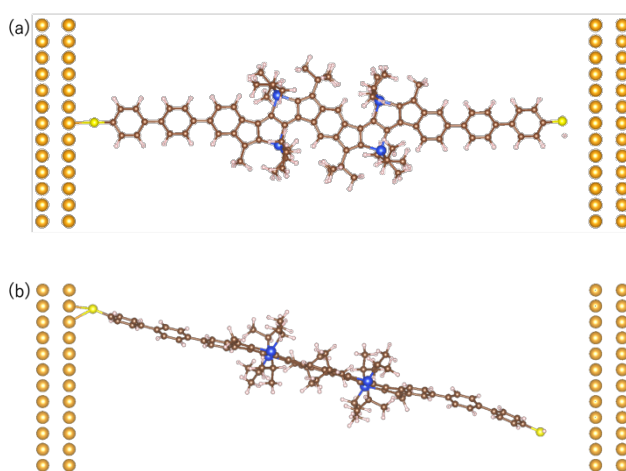


Fig. 2. Two kinds of semi-stable cross-linking system.

(a) A vertical system. (b) A diagonal system.

〔参考文献〕

- [1] Y. Liu, *et al.*, *Chem. Phys. Rev.* **2**, 021303 (2021). (2023).
 [2] D. Yin, *et al.*, *Adv. Electron. Mater.* 2400390 (2024).
 [3] 土畑瑛嗣ら、第 70 回応用物理学会春季学術講演会、上智大学四谷キャンパス、15p-B508-8 (1999).
 [4] 古島弥来ら、第 84 回応用物理学会秋季学術講演会、熊本城ホール、19p-D903-13 (2023).
 [5] T. Ono, K. Hirose, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 5016 (1999).

〔謝辞〕 本研究は JST CREST (JPMJCR22B4) の支援を受けたものである。

CNT 探針を用いた DNA の液中 FM-AFM 計測

FM-AFM measurement of DNAs in liquid using a CNT tip

金大院¹, WPI-NanoLSI²

○水野 雄介¹, 宮澤 佳甫^{1,2}, 寺前 圭吾¹, 児島 亮平¹, 福間 剛士^{1,2}

Kanazawa Univ.¹, WPI-NanoLSI²

°Yusuke Mizuno¹, Keisuke Miyazawa^{1,2}, Keigo Teramae¹, Ryohei Kojima¹, Takeshi Fukuma^{1,2}

E-mail: mizuno1112@stu.kanazawa-u.ac.jp

近年、周波数変調原子間力顕微鏡（FM-AFM）は飛躍的に発展しており、液中でサブナノスケール観察が可能となった。これまでに、FM-AFM を用いてマイカやカルサイト、DNA などのサブナノスケール計測が達成されてきた。一方で、AFM が潜在的に抱えている問題として、ナノサイズの探針形状に近い凹凸を有する試料の観察では、AFM 像で観察した形状の横幅が本来の構造よりも膨らんで可視化され、原理的に計測が困難であるという点が挙げられる（図 1a）。特に、タンパクなどの生体試料の多くはナノサイズの形状を有しており、試料全体のナノサイズの形状と試料表面のサブナノスケール観察を両立するような先鋭探針が求められていた（図 1b）。

そこで本研究では、原子レベルで先鋭化させたカーボンナノチューブ（CNT）探針を作製し、ナノサイズの生体試料観察への応用を目指した。電子顕微鏡内で、240AC カンチレバー（OPUS）の Si 探針先端に CNT を架橋して電流で加熱切断することで、先端直径 5 nm 以下、長さ 100~200 nm の CNT 探針を作製した。生体試料のモデル系として pUC19 DNA を使い、APTES 修飾したマイカ基板上に固定した DNA を超純水中で FM-AFM 計測した（図 1c）。一般的な Si 探針を用いると DNA の見かけ上の直径は 10 nm 程度であったが（図 1c(i)）、CNT 探針を用いると DNA の本来の直径に近い直径（2 nm）で可視化された（図 1c(ii)）。また、CNT 探針で DNA の二重らせん構造も問題無く可視化できることが分かった。

以上の通り、CNT 探針を用いることで、従来の Si 探針よりも原子レベルで形状制御された先鋭探針を用いることができ、DNA やタンパクなどのナノサイズの大きさを有する生体試料全体のサブナノスケール観察およびその表面のサブナノスケール計測が可能であることが示された。これにより、液中 FM-AFM の表面形状計測の精度や信頼性の向上に貢献することが期待される。

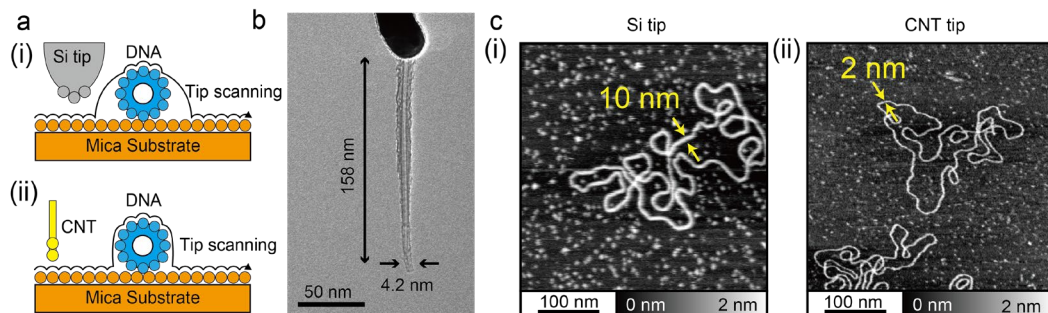


Fig. 1: (a) Schematic diagrams of AFM measurement of DNA using (i) Si and (ii) CNT tips. (b) TEM image of CNT tip. (c) FM-AFM images of pUC19 DNA on mica using (i) Si and (ii) CNT tips.

原子間力顕微鏡を用いたシロイヌナズナ細胞の力学特性評価

Evaluation of mechanical properties of *Arabidopsis thaliana* cells

by atomic force microscopy

奈良先端大物質¹, 奈良先端大バイオ², 奈良先端大 CDG³, 奈良先端大 MLC⁴

°山神見友¹, 山崎勇輝¹, 笹井美佳², 國枝正^{2,3}, 出村拓^{2,3}, 細川陽一郎^{1,3,4}

Div. Mat. Sci., NAIST.¹, Div. Biol. Sci., NAIST.², CDG, NAIST.³, MLC, NAIST.⁴

°M. Yamagami¹, Y. Yamasaki¹, M. Sasai², T. Kunieda^{2,3}, T. Demura^{2,3}, Y. Hosokawa^{1,3,4}

E-mail: Yamagami.miyu.yj5@ms.naist.jp

研究背景

植物は成長する過程で、周囲の環境に適応する。この現象を理解するためには、細胞レベルでの力学的状態変化を知る必要があり、微細な力学測定を可能とする原子間力顕微鏡 (AFM) が注目されている。AFM では、荷重変位曲線や形状を測定することができる。植物細胞においては、細胞壁の弾性率 E ・形状・膨圧 P が複雑に影響しており、各要素を分離して評価する必要がある。我々は、細胞壁を細胞の殻 (シェル) とみなすシェル理論による解析で、 E と P を分離して評価する方法⁽¹⁾を提案した。本研究では、実験植物であるシロイヌナズナの葉身表皮細胞への適用を検討した。

実験と結果

発芽から 20 日後のシロイヌナズナ葉柄部分から分離した葉身を水中でガラスボトムディッシュに固定し、QI モード (JPK Instruments AG) で形状と荷重変位曲線を測定した ($N=4$)。Fig. 1 に示すようにシロイヌナズナ葉身表皮細胞の一部を楕円半球とみなし、細胞の中心を基準とした長軸と短軸の曲率を得た。Fig. 2 に荷重変位曲線の代表例を示す。荷重変位曲線の初期段階は接触面積の増加に依存して非線形となった。非線形領域においてヘルツの接触理論によりヤング率を解析した結果、 $E = 5.5 \pm 2.8$ MPa が得られた。接触面積が増加するにつれて加重変位曲線は直線に近づいた。直線領域の傾きをシェルの見かけの剛性としてシェル理論を適用した結果、 $P = 1.4 \pm 0.95$ MPa、 $E = 200 \pm 150$ MPa となった。 P は、プレッシャープローブ法を用いた文献値と概ね一致した。 E に関しては、シェル理論で得られた値が、ヘルツの接触理論で得られた値よりも大きい結果となったが、レーザー共焦点顕微鏡と有限要素法を用いたシミュレーションで得られた文献値⁽²⁾と概ね一致する結果であった。一連の結果より、シロイヌナズナに対するシェル理論を用いた E と P の分離評価が可能であることが示された。

参考文献

- (1) S. Tsubawa, *et al.*, Scientific Reports, **12**, 13044 (2022).
- (2) W. Li, *et al.*, Plant Physiology 2022, **188**, 1435 (2022).

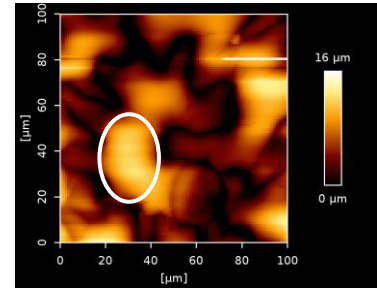


Fig. 1. Topography of an epidermal cell of *Arabidopsis thaliana* leaf blade. The part surrounded by an oval shows an elliptical hemisphere for analysis.

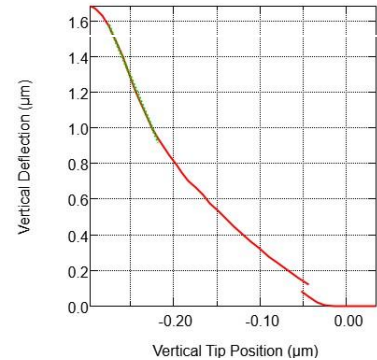


Fig. 2. Force curve of an epidermal cell of *Arabidopsis thaliana* leaf blade. The green line indicates range for estimating apparent stiffness.

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.11】 9.4 熱電変換、22.1 合同セッションM
「フォノンエンジニアリング」のコードシェア

[18a-C301-1~9] CS.11 9.4 熱電変換、22.1 合同セッションM 「フォノンエンジニアリング」のコードシェア

[18a-C301-1]

SiGe界面と短周期フォノンニック結晶ナノ構造によるSi薄膜の σ/κ 比の向上

○柳澤 亮人¹、小田島 綾華^{1,2}、井上 貴裕²、澤野 憲太郎^{1,2}、野村 政宏¹ (1.東大生研、2.東京都市大)

[18a-C301-2]

Stranski-Krastanov成長を用いて形成したエピタキシャルSi系ナノドット含有Ge薄膜の熱電特性

○柴垣 新¹、平田 悠海¹、石部 貴史^{1,2}、中村 芳明^{1,2} (1.阪大院基礎工、2.阪大OTRI)

[18a-C301-3]

Investigation of Heat Flux Sensitivity of Silicon-Large Scale Integrated Thermoelectric Device

○(DC)Md MehdeeHasan Mahfuz¹, Taisei Mito¹, Tatsuya Hayashi¹, Takeo Matsuki¹, Takano Watanabe¹ (1.Waseda Univ.)

[18a-C301-4]

プレーナ型集積マイクロ熱電発電デバイス発電性能のSiナノワイヤ幅依存性

○三嶋 真雄紀¹、三浦 拓也¹、新井 崇平¹、松木 武雄¹、渡邊 孝信¹ (1.早大理工)

[18a-C301-5]

実用熱電材料Bi₂Te_{3-x}Se_xのラマン振動モードのエネルギーと半値幅に対するSe置換の影響

○劉 銳安¹、宮田 全展¹、小矢野 幹夫¹ (1.北陸先端大)

[18a-C301-6]

酸化を抑制したナノバルクSi-Ge系熱電材料の熱電特性

○(M1)石原 峻伍¹、奥村 拓真¹、平田 圭佑¹、松波 雅治¹、竹内 恒博¹ (1.豊田工大)

[18a-C301-7]

多相からなるAg₃SnP₇焼結体における複合効果の検討

○(DC)中村 太一¹、宮田 全展¹、小矢野 幹夫¹ (1.北陸先端大)

[18a-C301-8]

非化学量論組成制御によるCo添加ハーフ・ホイスラー合金TiNiSnの熱電性能向上

○山崎 航佑¹、金 泰均¹、中津川 博¹ (1.横国大理工)

[18a-C301-9]

Investigation of p-type thermoelectric properties for Mn doped β -FeSi₂

○(M2)Umar Farooq¹, Sopheap Sam², Rio Oshita¹, Hiroshi Nakatsugawa¹ (1.Yokohama Nat Univ, 2.Nat Inst for Mat Sci)

SiGe 界面と短周期フォノン結晶ナノ構造による Si 薄膜の σ/κ 比の向上

Improvement of σ/κ Ratio in Silicon Thin Film

by SiGe Super-thin Film Interface and Short-period Phononic Crystal Nanostructures

東大生研¹, 東京都市大² ○柳澤亮人¹, 小田島綾華^{1,2}, 井上貴裕², 澤野憲太郎^{1,2}, 野村政宏¹

IIS Univ. of Tokyo¹, Tokyo City Univ.², °R. Yanagisawa¹, A. Odashima^{1,2}, T. Inoue², K. Sawano^{1,2}, M. Nomura¹

E-mail: r-yanagi@iis.u-tokyo.ac.jp

背景・目的: 熱エネルギーの有効利用に向けて、シリコン (Si) ウエハ上に作製される熱電発電エネルギーハーベスタの高性能化が研究されている [1]。熱電性能向上のために Si 材料の電気伝導向上と熱伝導率低減が有効であり、これまで厚さ 2 μm 以下の Si 薄膜においてフォノン結晶 (PnC) ナノ構造による熱電性能向上が報告されている[2]。今回、Si 薄膜に SiGe 超薄膜を挿入した超格子状の薄膜に PnC ナノ構造を組み合わせた試料について、薄膜面内方向の熱伝導率 κ と電気伝導率 σ を評価した結果について報告する。

手法・結果: SOI 基板上の厚さ~20 nm の単結晶シリコン層の上に、厚さ~80 nm のシリコン膜3層と厚さ~3 nm の $\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2}$ 薄膜2層を交互にエピタキシャル成長し、厚さ 270 nm の超格子薄膜を作製した。P イオン注入とアニール後の Hall 測定によりキャリア濃度 $1.4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 、 $\sigma = 46 \text{ kSm}^{-1}$ を得た。図 1(a-c)に示す μ -TDTR 法による κ 測定と4端子法による σ 測定が可能な試料を多数作製し、周期 400 nm と 200 nm の円孔配列 PnC 構造について測定を行った。結果について、まず PnC ナノ構造のない超格子薄膜の κ は $11.5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ となり、同程度の厚さの単結晶 Si と比較して 1/4 程度になっており、さらにネック幅の小さな PnC を作製することで $2.3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ まで低減された。周期 400 nm の PnC においては空隙率の増加により σ も大きく低減され、 σ/κ は低減したが、周期 200 nm の PnC は同じネック幅でも空隙率が小さいため σ の低減が小さく、 σ/κ を向上できる結果を得た。

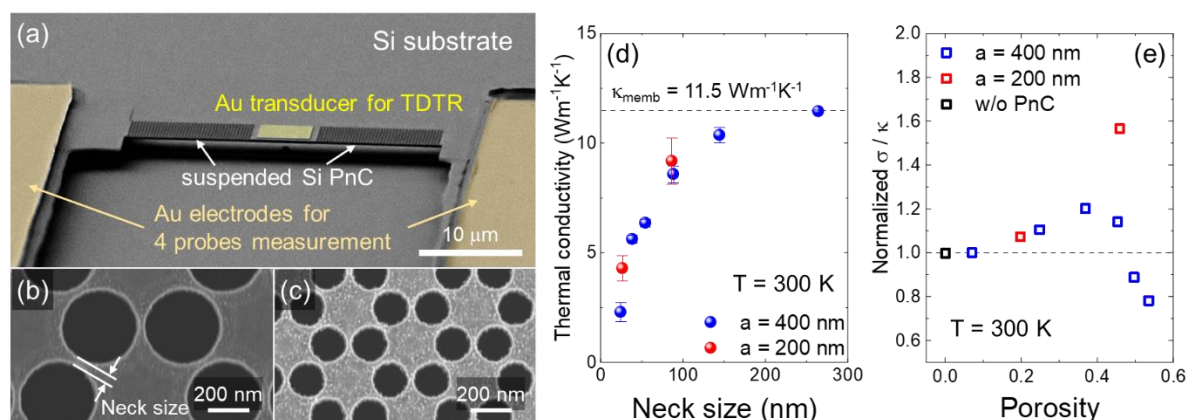


Figure 1 (a) Scanning electron microscope (SEM) image of fabricated micro-bridged structure for μ -TDTR and 4 probes measurement. (b, c) SEM image of honeycomb PnC nanostructures with period of 400 nm and 200 nm. (d) Measured thermal conductivity of Si and SiGe films as a function of PnC neck size. Broken line shows thermal conductivity of pristine membrane without PnC. (e) Ratio of measured electrical conductivity and thermal conductivity normalized by pristine membrane as a function of PnC porosity.

謝辞: 本研究は、JST CREST (JPMJCR19Q3)、JST 未来社会創造事業 (JPMJMI19A1)、および科学研究費補助金 (21H04635) の支援により遂行された。**参考文献:** [1] R. Yanagisawa *et al.*, Mater. Today Phys. **45**, 101452 (2024). [2] M. Nomura *et al.*, Mater. Today Phys. **22**, 100613 (2022).

Stranski-Krastanov 成長を用いて形成した エピタキシャル Si 系ナノドット含有 Ge 薄膜の熱電特性

Thermoelectric properties in epitaxial Ge films including

Stranski-Krastanov Si-based nanodots

阪大院基礎工¹, 阪大 OTRI² °柴垣 新¹, 平田 悠海¹, 石部 貴史^{1,2}, 中村 芳明^{1,2}

Eng. Sci. Osaka Univ.¹, OTRI Osaka Univ.²

°Arata Shibagaki¹, Yu Hirata¹, Takafumi Ishibe^{1,2}, Yoshiaki Nakamura^{1,2}

E-mail: u966757c@ecs.osaka-u.ac.jp

[背景・目的] Si や Ge は、環境低負荷材料であり高い熱電出力因子を有するが [1,2]、その高い熱伝導率 (κ) が熱電材料としての応用を妨げている。この課題を解決するべく、Si 母体の薄膜に、フォノン散乱体として極薄 SiO₂ 技術により極小・超高密度のナノドット (ND) を導入することで、大幅な κ 低減が実現されてきた[2,3]。しかし、同時に SiO₂ の界面で電子散乱が生じることで出力因子が低下するため、社会応用可能な性能に達していない。そこで我々は、Si より高い出力因子、低い κ をもつ Ge 薄膜と、SiO₂ を用いないナノ構造の導入を考え、ここでは Stranski-Krastanov (SK) 成長により Si 系 ND を Ge 層上に形成し、これを積層して形成したエピタキシャル Si 系 ND 含有 Ge 薄膜を提案する。本構造では、フォノン散乱体である ND による κ の低減とエピタキシャル Ge 伝導層由来の高出力因子により、高い熱電性能が期待できる。そこで、本研究では、上記構造の形成技術を確認してその熱電特性を明らかにすることを目的とした。

[実験方法] Si (001)基板を超高真空槽 ($\sim 10^{-8}$ Pa) に導入した後、Si 基板上に歪緩和 Ge バッファ層を形成した。その上に Si 系 ND を SK 成長で形成した後 (2.35 nm、500°C)、その上に Ge 層をエピタキシャル成長した (40 nm、400°C)。上記の Si 系 ND/Ge 層の形成過程を 5 回繰り返して積層することで、Si 系 ND 含有 Ge 薄膜を作製した。本薄膜に P イオン注入によるドーピングを行った。構造観察には、反射高速電子回折法、走査型電子顕微鏡法 (SEM)、原子間力顕微鏡 (AFM) 等を用い、熱電特性評価には ZEM-3、Hall 効果測定、 2ω 法等を用いた。

[結果] ND 観察用に別途作製した Si ND/Ge バッファ層/Si 基板の AFM 像から、Ge バッファ層上に ND が SK 成長していることを確認した。さらに、積層した薄膜の断面 SEM 像から ND 層と Ge 層からなる積層構造を確認した。本 Ge 薄膜の κ を測定したところ、バルクの Ge から ~ 90 %、Ge 単層膜よりも ~ 78 % 低減していることが分かった。また、本 Ge 薄膜の移動度は、バルクの Ge 並みに高い値であることが分かった。さらに、本 Ge 薄膜のゼーベック係数は、高電子密度領域でイオン化不純物散乱のみを考慮した理論線と一致することを確認した。これらより、狙い通り Ge 母体由来の高出力因子が得られた。本講演では、薄膜構造と熱電特性の関係について詳述する。

[謝辞] 本研究の一部は、基盤研究 A (23H00258) の支援により行われた。

[参考文献] [1] Y. Nakamura, et al., *Nano Energy* **12**, 845 (2015)., [2] Y. Nakamura, et al., *Sci. Technol. Adv. Mater.* **19**, 31 (2018)., [3] T. Taniguchi, et al., *Nanoscale* **13**, 4971 (2021).

Investigation of Heat Flux Sensitivity of Silicon-Large Scale Integrated Thermoelectric Device

Waseda Univ., ⁰Md Mehdee Hasan Mahfuz, Taisei Mito, Tatsuya Hayashi, Takeo Matsuki, Takanobu Watanabe

E-mail : mahfuzhasan502@fuji.waseda.jp

1. Introduction

This research demonstrates an advancement in the realm of heat flux sensing through the development of cavity-free thermoelectric (TE) devices. Conventional heat flux sensors often face difficulty with achieving optimal detection sensitivity while minimizing interference with the measurement target. In response, our study introduces a novel approach, exploiting the advantages of cavity-free architecture to enhance thermal resistance reduction and boost heat flux sensitivity via miniaturization and large-scale integration. In this work, we investigated the heat flux sensitivity (HFS) of large-scale integrated TE devices that utilize 50592~70668 stages of silicon nanowire (Si-NW) thermoelements and, in a bileg-type device, the maximum HFS of 345 $\mu\text{V}/\text{W}$ of was obtained.

2. Experimental

The cavity-free TE device has been fabricated on the Silicon on Insulator (SOI) substrate. The SOI layer was turned into wires and pads by photolithography and reactive ion etching. TiN/AlCu/TiN/Ti were deposited by sputtering and patterned into electrodes. Figure 1 depicts the device schematic. Two varieties of TE devices, namely unileg (comprising n-type material) and bileg (consisting of both n and p-type materials), were manufactured. The integrated devices have 50592~70668 stages in an area of $5\text{mm} \times 5\text{mm}$. The hot-side electrode including the heat guide was heated by attaching a heater on the top of the device, whose temperature was maintained at $25\sim 35^{\circ}\text{C}$. The schematic of the measurement process is shown in Fig. 2. The TE device was sandwiched between two copper plates to certify the heat flow. HIOKI Z2012 ‘S’ size heat flow sensor was used between the device and the upper copper plate to measure heat flux [1]. The cold stage was maintained at 20°C by a Peltier cooler.

3. Results and Discussion

To characterize the sensitivity of a heat flux sensor several parameters such as heat flux density, output voltage should be measured. The sensitivity of the device can be obtained by dividing its output voltage by the externally applied heat flux (Fig. 3a). It can be seen from the experimental curve that the maximum sensitivity of our fabricated device is $7.1 \mu\text{V}/(\text{W}/\text{m}^2)$. It also can be seen from the correlation coefficient (R^2) of the fitting result that the fitting curve is above 0.99, indicating that the device has an excellent linear relationship with the measured heat flux which is very crucial for an ideal heat flux sensor.

To compare the fabricated device to other heat flux sensors, the sensitivity of each sensor was divided by its area which is known as volt-watt sensitivity. Although the magnitude of the volt-watt sensitivity

of the device differs from our previous report (highest: Unileg, stage:70668) [9] due to the variation of Ion implantation in the device, this new investigation finds that the bileg TE device also shows the higher volt-watt sensitivity as compared to other commercially available heat flux sensors (Fig. 3b) [1-8]. The volt-watt sensitivity of bileg device is still lower than the previous unileg device. By considering TE power, the bileg would be superior to the unileg due to reduced electrical resistance. However, HFS, which is related to open circuit voltage, is higher for the unileg device due to the larger number of stages.

Conclusion

In this study, the HFS of integrated devices with a cavity-free structure was demonstrated. The fabricated device shows the highest HFS as compared to other sensors. The device will lead to a new effective way to measure high HFS.

References

[1] www.hioki.com [2] www.greenteg.com [3] www.omega.com/en-us/about-us [4] www.hukseflux.com [5] www.prede.com/english/phf-1001.html [6] Q. Xu Measurement 198, 111419 (2022). [7] W. Tian, J. Microelectromech. Sys., 29, 36 (2020). [8] A. Grifford, J. Thermophys. Heat Trans. 24, 69 (2010). [9] Mahfuz et al, SSDM 2023, C-7-03

Acknowledgments

This work was supported by JST-CREST (JPMJCR15Q7 and JPMJCR19Q5), AIST-SCR, and MEXT KAKENHI, Grant No. 23K22800.

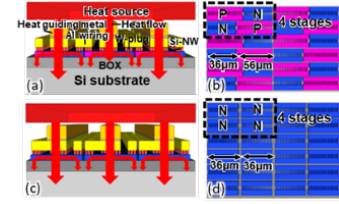


Fig.1. Cross-sectional view of the devices (a) bileg (b) unileg. Plane view of the integrated devices (c) bileg, (d) unileg

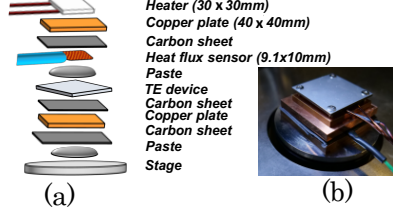


Fig.2. Experimental setup for characterizing HFS.

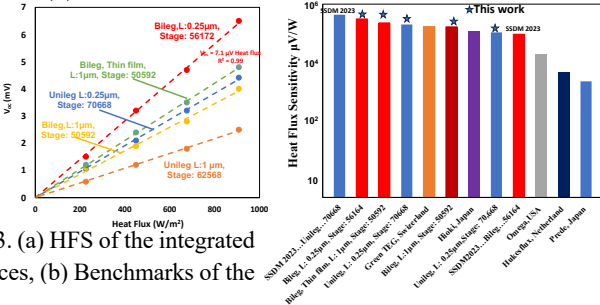


Fig.3. (a) HFS of the integrated devices, (b) Benchmarks of the

プレーナ型集積マイクロ熱電発電デバイス発電性能の Si ナノワイヤ幅依存性

Si-nanowire-Width-Dependent Performance of Planar Integrated Micro Thermoelectric Generator

早大理工, [○]三嶋真雄紀, 新井崇平, 三浦拓也, 松木 武雄, 渡邊 孝信Waseda Univ., [○]M.Mishima, S.Arai, T.Miura, T.Matsuki, T.Watanabe

E-mail: mishima.juggling@akane.waseda.jp

【はじめに】IoT デバイスの駆動電源として環境中の熱エネルギーを利用する熱電発電 (Thermoelectric Generator; TEG) 技術に期待が寄せられている。我々の研究グループは Si-CMOS プロセスで製造可能な集積マイクロ熱電発電デバイス (集積 μ -TEG) を開発に取り組んでいる。我々の集積 μ -TEG では、最表層の金属配線を導熱路として用い、ここから局所的に熱流を注入して基板表面に配置した短い Si ナノワイヤ (Si-NW) に温度勾配を形成し、発電を行う。これまでの研究で、Si-NW 長を短くし集積密度を上げることで発電密度が上昇することを確認している [1]。今回、Si-NW 幅の集積 μ -TEG の発電性能への影響を調査した。

【実験方法】集積デバイスの作製プロセスは以下の通りである。まず SOI 基板の SOI を Si-Pad と Si-NW にパターンニングした。Si-NW 長は $1\mu\text{m}$ で統一し、Si-NW 幅を $0.1, 0.3, 0.5, 0.8\mu\text{m}$ として $0.2\mu\text{m}$ 間隔で 70 本、並列に配置した。また、同じく $0.2\mu\text{m}$ 間隔で、幅 $3, 12\mu\text{m}$ の Si-NW を 3 本並列に並べたものも作製した。続いて Si-NW 表面を熱酸化で覆い、 P^+ イオンをドーズ $2.0 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ で注入した。その上に層間絶縁膜として SiO_2 、電気的配線層として $\text{TiN}/\text{Al}/\text{TiN}/\text{Ti}$ を成膜した後、層間絶縁膜として SiO_2 を成膜した。その後、高温側 Pad の上部にビア、及び導熱路となる金属膜を形成した。今回、Si-NW の下にキャビティ (空洞) を設ける構造と設けない構造の 2 種類の集積 μ -TEG を作製した。層間絶縁膜の開口部から XeF_2 ガスで Si 基板を選択的にエッチングし、約 $24\mu\text{m}$ のキャビティを Si 基板内に形成した。

デバイスの熱電発電性能測定は、室温に保たれた試料ステージに熱伝導率 $1.7\text{W}/\text{mK}$ のカーボンシートを敷き、その上にそのデバイスを載せて行われた。導熱路の金属配線に電流を印加し、この抵抗加熱によって集積 μ -TEG を駆動した。導熱路の温度は、予め計測しておいた温度-抵抗特性を用いて、電流印加した際の抵抗値より見積られた。

【実験結果と考察】Fig. 1 に開放電圧と Si-NW 幅の逆数の関係を示す。キャビティ無 (Fig. 1(a))、キャビティ有 (Fig. 1(b))、いずれの場合でも概ね、Si-NW 幅が狭い程、開放電圧が大きくなる傾向がみられた。Si-NW 幅が狭くなることで、熱抵抗が大きくなり、Si-NW により大きな温度勾配が形成されたためと考えられる。キャビティを設けた場合、開放電圧は約 30 倍上昇しており、キャビティによって基板へのリーク熱を低減させることが効果的であることを示している。Fig. 2 に、最大発電力と Si-NW 幅の逆数との関係を示す。キャビティなしの場合、逆に Si-NW 幅が大きいほど発電密度が大きくなった。これは、Si-NW の熱抵抗

低下による開放電圧の減少より、電気抵抗減少の効果が大きかったためである。キャビティを設けた場合、Si-NW 本数が 3 本の場合では同様の傾向がみられたが、70 本の場合では Si-NW 幅 $0.3\mu\text{m}$ でピークが見られた。これは Si-NW 幅の合計が大きくなり、Si-NW 部の熱抵抗が下がった結果、印加される温度差が小さくなったためと考えられる。Fig. 3(b) でも、その傾向がみられる。キャビティを設けた場合、Si-NW 部に印加される温度差が大きくなったことで発電量が大幅に増加したが、その分、Si-NW 部全体の熱抵抗に性能が大きく依存するようになるため、Si-NW 本数の違いも顕在化したと考えられる。

【結論】シリコン集積 μ -TEG を作製し、Si-NW 幅依存性を詳しく調査した。キャビティを設けない場合は Si-NW 幅を大きくし電気抵抗を下げることで効果的である。一方キャビティを設けた場合は、Si-NW 部の熱抵抗と電気抵抗のトレードオフがみられ、Si-NW を 70 本並列接続した場合で、幅 $0.3\mu\text{m}$ が最大値となることが明らかになった。

【謝辞】本研究は JST-CREST (JPMJCR19Q5)、科研費・基盤研究 (B) (23K22800) の支援により実施された。

【参考文献】[1] S. Arai et al., 2024 Jpn. J. Appl. Phys. 63 02SP38.

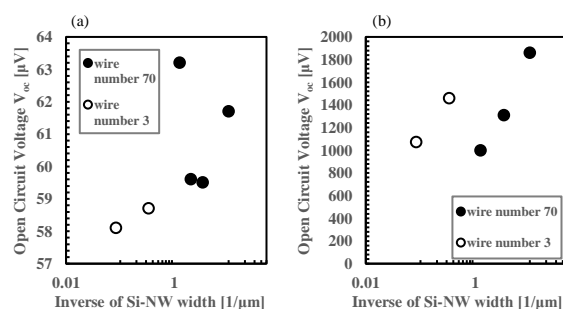


Fig.1 experiment result of V_{oc} v.s. inverse of Si-NW width (a) cavity free device (b) cavity device

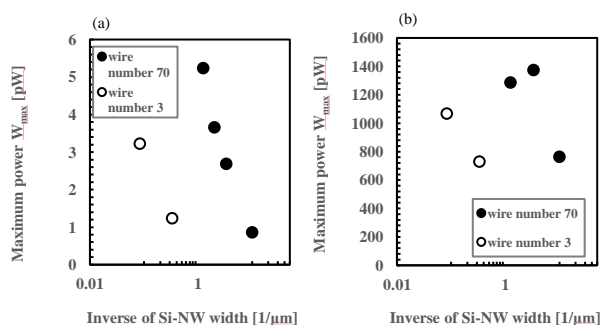


Fig.2 experiment result of W_{max} v.s. inverse of Si-NW width (a) cavity free device (b) cavity device

実用熱電材料 $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$ のラマン振動モードのエネルギーと 半値幅に対する Se 置換の影響

Effect of Se substitution on energy and FWHM of Raman active modes in $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$

北陸先端大 °劉 鋭安, 宮田 全展, 小矢野 幹夫

JAIST, °Ruian Liu, Masanobu Miyata and Mikio Koyano

E-mail: s2260001@jaist.ac.jp

我々は、Bi-Te 系熱電材料のラマンスペクトルの半値幅やラマンシフトを解析することで、格子振動の非調和性を調査し、低熱伝導率の起源を探究している。前回の発表では、フォノン散乱過程における非調和性の評価に有効であることを示した。今回は、優れた熱電性能を持ち、広く実用化されている Se 置換した熱電材料を対象とし、各振動モードのフォノンエネルギーの温度変化率や半値幅のブロードニングが Se 置換量によってどのように変化するかを明らかにする。

$\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$ の極薄試料は固相溶融法と機械剝離法によって作製され、X 線回折法で各試料の結晶構造を同定した。ラマン散乱分光測定の場合は、スポット径 $1\mu\text{m}$ の 660nm のレーザーを使用し、無偏光と $Z(\text{XX})\bar{Z}$ 偏光の条件で測定を行った。126 – 363 K の温度範囲でラマンスペクトルを測定し、得られたスペクトルを格子振動モード（面内振動モード E_g と面外振動モード A_{1g}^1 と A_{1g}^2 ）ごとに解析し、Se ドープ量による振動モードのエネルギーや緩和時間の変化を得た。

図 1 に $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$ のラマンスペクトルを示す。黒い点は生データであり、赤線は Voigt 関数を用いたフィッティング曲線である。3 つのラマン活性な振動モード (E_g , A_{1g}^1 , A_{1g}^2) が観測される。Se ドープ量の増加につれ、各モードのラマンシフトは高周波数側へシフトするが、 A_{1g}^1 モードの変化率は他両モードより小さいことが注目される。振動数の低い A_{1g}^1 モードは Bi-Te1 ボンドの一方方向の面間振動であるため、Se 置換による分極率変化が小さいためと考えられる。ピークの半値幅の Se 濃度依存性を図 2 に示す。 A_{1g}^1 モードと異なり、 E_g モードの半値幅は Se ドープ量の増加に伴って大きく変化する。これは、(1) 結晶対称性の破れによる A_{2u}^1 モードのラマン活性化、(2) Bi-Te1 ボンドと Bi-Se1 ボンドのエネルギーの分裂などが原因であると考えられる。

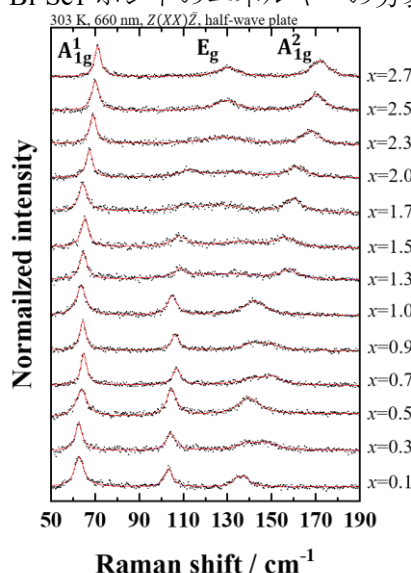


Fig. 1 Raman spectra of $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$

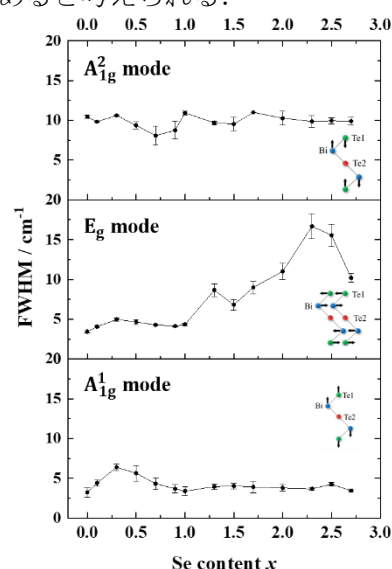


Fig. 2 FWHM vs Se content in $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$

酸化を抑制したナノバルク Si-Ge 系熱電材料の熱電特性

Thermoelectric properties of nanobulk Si-Ge thermoelectric materials with suppressed oxidation.

豊田工業大学, [○](M1)石原 峻伍, 奥村 拓真, 平田 圭佑, 松波 雅治, 竹内 恒博

Toyota Tech. Inst., [○]Ryogo Ishihara, T. Okumura K. Hirata, M. Matsunami, and T. Takeuchi

E-mail: sd24407@toyota-ti.ac.jp

緒言

Si-Ge 系熱電材料は比較的安価で無毒な元素から構成されており, 高温において比較的高い無次元性能指数 ZT を示す. 我々は, 高エネルギー遊星型ボールミルによるナノ結晶化と低温・高圧焼結技術の併用による粒成長の抑制により, 格子熱伝導度 κ_{lat} の著しい低減を実現した. さらに, 微量の Fe により電子構造を建設的に変調することで電子物性を制御し, 焼結温度である 900K で $ZT = 1.88$ を示す n 型材料の作製に成功した.^[1] 焼結温度以上の高温域において, $ZT = 3.7$ を観測した^[2]が, ナノ結晶化のプロセス中における試料の酸化や高濃度に加えた P 原子の蒸発から, 主に比抵抗測定の再現性に問題が生じていた.^[3] 酸化や P の蒸発を防ぎ, 低い電気抵抗率を維持することができれば, さらに大きな ZT を得られる可能性があると考えた.

本研究ではナノバルク Si-Ge 系熱電材料の酸化抑制を目的として新たな試料の作製プロセスの確立し, その手法を用いて, ZT の向上を目指した.

実験方法

$ZT = 1.88$ (900 K), および, 3.7 (1000 K)を観測した組成 $(\text{Si}_{55}\text{Ge}_{35}\text{P}_{10})_{99}\text{Fe}_1$ で試料を作製した. 遊星型ボールミルを用いて 70 vol.% Ar + 30 vol.% H_2 の雰囲気下で原料を混合した粉末をメカニカルアロイングすることで, ナノ結晶化した. 金属元素 1 個当りの酸化物の生成自由エネルギーの絶対値が Si よりも大きい Zr や Mg^[4]の粉末で, ボールミルで作製したナノ粒子粉末を挟み込み, 798 K, 350 MPa, 2 時間の条件でパルス通電焼結することでバルク化した. バルク試料の密度はアルキメデス法により理論密度の 90%以上であることを確認した.

作製したバルク試料の粉末 XRD パターンからダイヤモンド構造の単相試料であること

を確認した. 試料の組成は SEM-EDX によって評価した.

300–1000 K の温度領域で, 電気抵抗率, ゼーベック係数, および熱伝導度を, それぞれ, 直流四端子法, 定常法, およびレーザーフラッシュ法にて測定した.

結果

Fig.1 にメカニカルアロイング(MA)後の $(\text{Si}_{55}\text{Ge}_{35}\text{P}_{10})_{99}\text{Fe}_1$ 粉末試料, および, 焼結後のバルク試料の XRD パターンを示す. シェラーの式から計算したバルク試料の平均粒径は 11.8 nm となり, ナノバルク Si-Ge 系試料が作製できたことを確認した. EDX による組成分析により, 試料に含有される酸素濃度は, Zr を酸素ゲッターとして用いた試料で 1at.%以下に低減していることを確認した. 低酸素濃度を示す試料に対して比抵抗とゼーベック係数を測定したところ, 測定を行った全温度領域で大きなゼーベック係数の絶対値 ($-400 \mu \text{VK}^{-1}$) を維持したまま, 900 K 以上では比抵抗が $10 \text{ m}\Omega \text{ cm}$ 以下にまで減少することを見出した. 得られた熱電物性の詳細, および, P 濃度依存性については講演にて報告する.

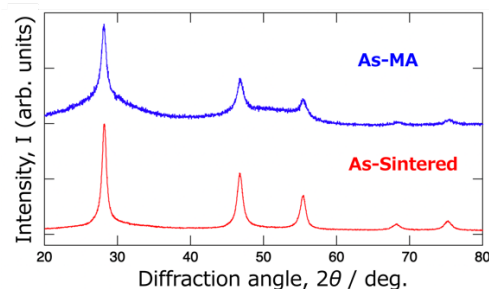


Fig.1. X-ray diffraction patterns of $(\text{Si}_{55}\text{Ge}_{35}\text{P}_{10})_{99}\text{Fe}_1$

参考文献

- [1] Kévin Delime-Codrin *et al.*, APEX 12, 045507 (2019).
- [2] Swapnil Ghodke *et al.*, arXiv:1909.12476 (2019).
- [3] 正岡伊織ら, 第 18 回日本熱電学会学術講演会 講演要旨集 (2021).
- [4] 日本金属学会編:改訂 3 版金属データブック, 丸善, p106 (1993).

多相からなる Ag_3SnP_7 焼結体における複合効果の検討

Investigation of the composite effect in pelletized Ag_3SnP_7 composed with multiple phases



北陸先端大¹ ○(DC) 中村 太一, 宮田 全展, 小矢野 幹夫

JAIST, °Taichi Nakamura, Masanobu Miyata, and Mikio Koyano

E-mail: s2320038@jaist.ac.jp

我々はリン化物半導体 Ag_3SnP_7 と縮退半導体 $\text{Ag}_6\text{Si}_6\text{Sn}_4\text{P}_{12}$ を含む計 6 相で構成された, 多相からなる Ag_3SnP_7 焼結体の熱電物性に注目している^[1,2]. この焼結体の無次元性能指数 ZT は, 各相の ZT から 10 倍以上向上しており, これは, 合成したそれぞれの単相の物性値からは説明できないことを報告した. 本研究では, この系の物性を各相の物性値を用いた有効媒質近似^[3,4]により解析し, 多相焼結体の物性 (電気伝導率 σ ・ゼーベック係数 S) を再現できるか検証した. また, 中心的な役割を果たすと考えられる Ag_3SnP_7 の原子欠損による σ , S の変化についても調査した.

本研究では, Bergman-Fel の有効媒質定理^[3,4]に基づき, 多相焼結体の物性を再現する Ag_3SnP_7 或いは $\text{Ag}_6\text{Si}_6\text{Sn}_4\text{P}_{12}$ と金属相の組み合わせで電気伝導率 σ , ゼーベック係数 S について計算した. 金属相は, Ag_3SnP_7 との組み合わせ時は $\text{Ag}_6\text{Si}_6\text{Sn}_4\text{P}_{12}$ と Ag_3Sn の物性値を使用し, $\text{Ag}_6\text{Si}_6\text{Sn}_4\text{P}_{12}$ との組み合わせ時は Ag_3Sn と $\text{Sn}_4\text{P}_{2.65}$ の物性値を使用した. その結果, Ag_3SnP_7 及び $\text{Ag}_6\text{Si}_6\text{Sn}_4\text{P}_{12}$ の単相の実験値では多相焼結体の物性を再現できないことを明らかにした. このことは多相焼結体の物性を再現するには, 単相では絶縁体に近い Ag_3SnP_7 へキャリアが供与され, 縮退半導体となる必要があることを示唆している. もう一つの可能性として, 単相では Ag 欠損によりキャリアが供与されていた $\text{Ag}_6\text{Si}_6\text{Sn}_4\text{P}_{12}$ へのキャリア供与が低減されることでも多相焼結体の物性を再現できる.

Ag_3SnP_7 へのキャリアドーピングの検討として, 原子欠損が挙げられる. Fig. 1 に仕込み組成比を調整することで原子欠損させた Ag_3SnP_7 の S - σ プロットを示す. Ag 欠損させたもの (赤色) と Sn 欠損させたもの (青色) は母体 (黒色) と比べ, S がそれほど低下せず, 必要とされる縮退半導体の物性値 (100 $\mu\text{V}/\text{K}$ 程度) に全く達していないことがわかる. このことは, Ag や Sn 欠損は, この系におけるキャリア最適化の中心的な役割を担っていないことを示唆している.

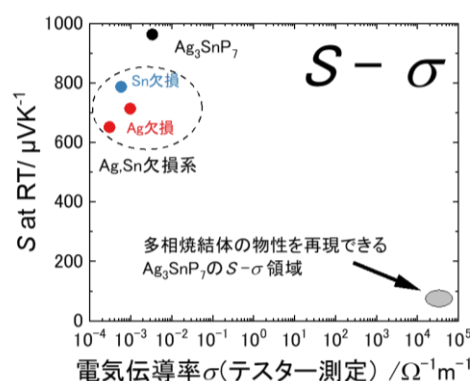


Fig. 1 S - σ relationship in atomic deficiency system of Ag_3SnP_7 .

[謝辞]本研究は、JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム JPMJSP2102 の支援を受けた。

[1] 中村 太一 他, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会(2024).

[2] T. Nakamura et al., 40th International Conference on Thermoelectrics, 2024.

[3] Bergman, D. J.; Fel, L. G, Journal of Applied Physics, **85**, 8205 (1999).

[4] S. Sakane, T. Ishibe, K. Mizuta, M. Kashino, K. Watanabe, T. Fujita, Y. Kamakura, N. Mori, and Y. Nakamura, ACS Applied Energy Materials **3**, 1235-1241 (2020).

非化学量論組成制御による Co 添加ハーフ・ホイスラー合金 TiNiSn の熱電性能向上

Improvement of thermoelectric performance of Co-doped half-Heusler TiNiSn by off-stoichiometric composition

横国大理工¹, 〇山崎 航佑¹, 金 泰均¹, 中津川 博^{1*}Yokohama Natl. Univ.¹Kosuke Yamazaki¹, Taegyun Kim¹, Hiroshi Nakatsugawa^{1*}

* E-mail : nakatsugawa-hiroshi-dx@ynu.ac.jp

ハーフ・ホイスラー合金 TiNiSn は環境親和性が高く、高温 (<1273 K)でも化学的に安定した N 型熱電材料である。我々の研究グループは TiNiSn の電気伝導を P 型に制御する研究を行っており、前回(第 71 回応用物理学会春季学術講演会)の発表では Co ドーピングにより P 型に変化させた TiNi_{1-x}Co_xSn (0≤x≤0.15)の熱電特性について発表した。TiNi_{1-x}Co_xSn (0≤x≤0.15)は x≥0.03 で電気伝導が N 型から P 型へと変化し、x=0.05 の時、T=700 K で作製した試料の中での最大の ZT(=0.12)を示した。今回、我々は非化学量論的に組成制御することで Co ドーピングした TiNi_{1-x}Co_xSn の ZT 向上に成功したため、その結果について発表する。

試料の作製には高密度な試料が得られるアーク溶解法を用いた。それぞれの原料を合計 15 g になるよう秤量し、真空アーク溶解装置を用いて Ar 雰囲気下で熔融した。作製した試料はワイヤ放電加工により測定用の寸法(ρ, S : 7×7×1 mm, κ : 7×7×2 mm)へと切り出した後、酸化防止のため石英管に真空封入して 1073 K, 168 h の均質化処理を行った。作製した試料は粉末 X 線回折測定を行い、得られた回折パターンからリートベルト解析によって結晶相を同定し、ハーフ・ホイスラー構造であることを確認した。80~395 K の電気抵抗率及びゼーベック係数の測定は ResiTest8300, 395~800 K の測定には自作の装置を用いた。300~800 K の熱伝導率の測定は熱電特性評価装置 PEM-2 を用いた。

Fig. 1 に TiNi_{0.97-x}Co_{0.03}Sn (x=0, 0.10) の ZT の温度依存性を示す。非化学量論組成((Ni+Co)=0.90)で作製した TiNi_{0.87}Co_{0.03}Sn は化学量論組成((Ni+Co)=1.0)で作製した TiNi_{0.97}Co_{0.03}Sn よりも ZT が最大で約 3 倍上昇し、T=700 K の時、ZT=0.13 を示した。ZT が増大したのは全温度範囲にわたって ρ が減少したことに起因する。Ren 等¹⁾によると、Ni 組成比を小さくすることで格子間 Ni 原子や局所的な fH 相の減少が報告されており、非化学量論組成制御によって電荷輸送特性が改善したことが考えられる。

講演では結晶構造解析の結果と、Co と Ni の組成にバリエーションを増やした試料の熱電特性について詳細に報告する予定である。

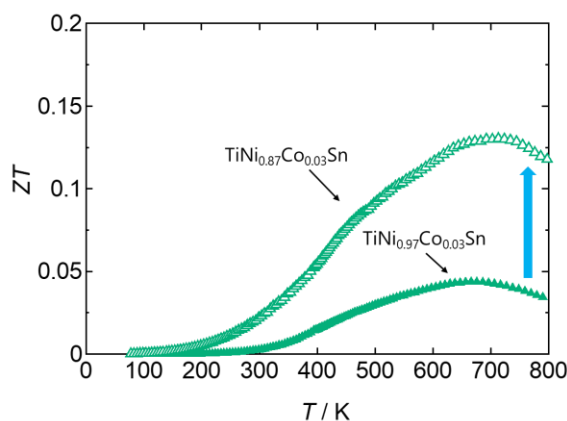


Fig. 1. Temperature dependence of ZT for TiNi_{0.97-x}Co_{0.03}Sn (x=0, 0.10).

参考文献

- 1) W. Ren, H. Zhu, J. Mao, L. You, S. Song, T. Tong, J. Bao, J. Luo, Z. Wang, Z. Ren, *Adv Electron Mater* **5**, 1900166 (2019).

Investigation of p-type thermoelectric properties for Mn doped β -FeSi₂

Farooq Umar¹, Sopheap Sam², Rio Oshita¹, and Hiroshi Nakatsugawa^{1*},

¹Yokohama National University, ²National Institute for Materials Science

*E-mail: nakatsugawa-hiroshi-dx@ynu.ac.jp

Introduction

According to scientists, over 60% of global energy consumption losses occur due to waste heat released into the environment without utilization. Thermoelectric materials offer a solution by converting this dissipated heat into electricity.¹⁾ Iron Silicide (FeSi₂) structured systems are the most investigated materials. This is because of their eco-friendly nature²⁾ and flexible crystal structure³⁾ that can be modified via various dopants to demonstrate the desired physical properties. They can exist in 3 phases: α -Fe₃Si₅, β -FeSi₂ & ε -FeSi.⁴⁾ Among them β -FeSi₂ is the semiconducting phase while the rest are metallic phases.⁴⁾

Experimental Procedures

After weighting pure Fe, Mn & Si raw materials were proceeded to the Arc Melting in Argon (Ar) environment to fabricate an ingot. Bulk samples were cut by NC wire cutting apparatus. The polished samples were fabricated by Heat Treatment with a maximum temperature of 1150°C for 3h to make it single β -phase from peritectoid reaction of ε and α -phase and then Annealed at 840°C for 20h to enhance their properties. Rigaku-SmartLab calculated X-ray Diffraction (XRD) data of powdered form sample while SEM images of polished bulk samples were taken by Keyence VE-8800 to understand the microstructure of the sample. ResiTest8300 measured Thermoelectric Properties like Seebeck Coefficient and Resistivity from 80-395K in Helium atmosphere. Thermal Conductivity κ was measured by PEM-2.

Results & Discussions

For all Mn doped samples, the Seebeck coefficient S is positive indicating that all Mn doping contributed to the p-type nature of FeSi₂. Furthermore, Mn doping also contributed to the reduction of bipolar effect as compared to non-doped FeSi₂¹⁾. The carrier concentration effect was dominant until Fe_{0.95}Mn_{0.05}Si₂ while the effect of effective mass gets dominant from Fe_{0.96}Mn_{0.04}Si₂. The maximum Power factor PF was availed for Fe_{0.97}Mn_{0.03}Si₂ sample because of which the maximum ZT that is achieved during this research study is also for Fe_{0.97}Mn_{0.03}Si₂ as shown in Fig 1.

References

- 1) S.Sam, F.Umar, M.Namba, K.Yamazaki, H.Nakatsugawa, Journal of Alloys and Compounds, **989**, 174367 (2024).
- 2) S.Sam, H.Nakatsugawa, and Y.Okamoto, Materials Advances, **4**, 2821 (2023).
- 3) S.Sam, H.Nakatsugawa, and Y.Okamoto Japanese Journal of Applied Physics, **61**, 111002 (2022).
- 4) S.Sam, K.Yamazaki, H.Nakatsugawa, Solid State Communications, **371**, 115287 (2023).

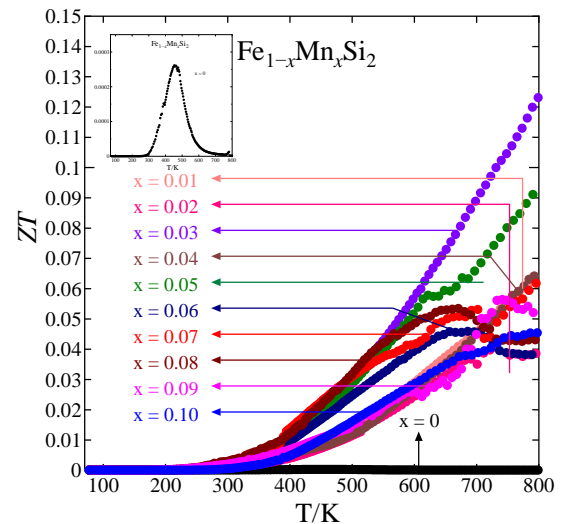


Fig 1. ZT of β -Fe_{1-x}Mn_xSi₂ ($0 \leq x \leq 1$)

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.12】 12.6 ナノバイオテクノロジー、12.7 医用工学・バイオチップのコードシェア

[19a-C32-1~8] CS.12 12.6 ナノバイオテクノロジー、12.7 医用工学・バイオチップのコードシェア

[19a-C32-1]

[第22回有機分子・バイオエレクトロニクス分科会 奨励賞受賞記念講演] 薄膜自己組立てを用いたバイオデバイス技術

○酒井 洸児^{1,2}、手島 哲彦³、後藤 東一郎^{1,2}、中島 寛^{1,2}、山口 真澄^{1,2} (1.NTT 物性研、2.NTT BMC、3.NTT リサーチ)

[19a-C32-2]

多粒子格納型デジタルイムノアッセイ法によるノロウイルス検出系開発

○安浦 雅人¹、芦葉 裕樹¹、堀口 諭吉¹、福田 隆史¹ (1.産総研)

[19a-C32-3]

COMSOL有限要素解析法を用いた高感度Siナノワイヤバイオセンサの最適な構造の予測

○張 慧¹、阿部 真優菜¹、大澤 郁弥¹、邱 亜威¹、大嶋 紀安²、加治佐 平³、坂田 利弥⁴、和泉 孝志⁵、曾根 逸人¹ (1.群馬大院理工、2.群馬大院医、3.株式会社SympaFit、4.東京大院工、5.帝京平成大)

[19a-C32-4]

バンコマイシンの高感度なリアルタイム計測のための表面プラズモンハイドロゲルアプタセンサ

○當麻 浩司¹、田口 結彩²、飯谷 健太²、荒川 貴博³、三林 浩二² (1.芝浦工大工、2.東京医科歯科大、3.東京工科大)

[19a-C32-5]

非レクチンのタンパク質検出に向けた糖鎖高分子バイオセンシング

○寺田 侑平¹、青木 寛¹ (1.産総研・環境創生)

[19a-C32-6]

ペプチド修飾した半導体カーボンナノチューブ薄膜バイオセンサの作製と評価

○(M1)永峯 旭¹、内山 晴貴¹、片浦 弘道²、本間 千柊³、早水 裕平³、大野 雄高^{1,4} (1.名大工、2.産総研、3.東工大、4.名大未来研)

[19a-C32-7]

パリティ時間対称性を用いたスマートコンタクトレンズ用電力伝送システム

○(M2)林 立喜¹、アズハリ サマン¹、三宅 丈雄¹ (1.早大IPS)

[19a-C32-8]

両面ナノチューブ膜を介した細胞間物質輸送システムの開発

○(M2)水口 侑衣子¹、チョウ ボーウェン¹、小山 和洋¹、リュウ ビンフー¹、チョウ ロンタウ¹、ウー ジョウジー¹、リン シュウシン¹、三宅 丈雄¹ (1.早大IPS)

薄膜自己組立てを用いたバイオデバイス技術

Self-folding materials and biodevices

NTT 物性基礎研, バイオメディカル情報科学研究センタ¹, NTT リサーチ²,

○酒井 洸児¹, 手島 哲彦², 後藤 東一郎¹, 中島 寛¹, 山口 真澄¹

NTT Basic Research Laboratories and Bio-Medical Informatics Research Center¹, NTT Research²,

○Koji Sakai¹, Tetsuhiko Teshima², Toichiro Goto¹, Hiroshi Nakashima¹, Masumi Yamaguchi¹

E-mail: ko.sakai@ntt.com

【緒言】近年、培養細胞を用いて臓器の形状や環境を模倣することで、チップデバイス上に生体のモデルを作製する技術が注目されている。通常の培養組織が二次元平面に育つのにに対し、実際の臓器は様々な立体構造を持つことから、細胞の足場を立体的に作製する技術が盛んに研究されている。その中で我々は、微細な立体構造を作製するために、薄膜を自己組織的に屈曲させる手法(自己組立て技術)を研究してきた[1-4]。さらに、立体構造上に育てた培養組織から生体信号をセンシングし、刺激を印加することを想定し、特有の電氣的・光学的性質をもつグラフェンを用いて自己組立てを実現してきた。本講演では、自己組立て技術の原理と制御性に加え、デバイス応用例を紹介する。

【実験・考察】自己組立て薄膜は、犠牲層となるアルギン酸カルシウムゲル、グラフェン、およびパリレンC薄膜により構成される(Fig.1A)。それぞれを積層した後に、フォトリソグラフィと酸素プラズマ処理により、マイクロメートル単位で形状を制御した薄膜を得る。犠牲層の溶解に伴って、主にパリレンCに残留した応力を駆動力として自発的な屈曲が誘導される[1]。Fig.1Aに示すように、二次元形状、薄膜の厚さ、および積層順序に依存して、曲げの向き、曲率半径、および軸の方向といった自己組立ての最終形状が変化する。例えば、薄膜の厚みが増すにつれて曲率半径は増大するほか、積層順序によって曲率半径が異なる(図1B)。パリレンC両面にグラフェンを転写した場合でも駆動力の大小により屈曲が誘導されるため、筒形状の内面をグラフェン電極とした神経デバイスに応用することができる[4]。また、パターニング時に細孔を施すことで、立体空間に細孔を配置することが可能であり、内壁・外壁を使った共培養系にも展開することができる[3]。さらには、細孔を介して電流を流すことで、外側のみにグラフェン層がある場合にも筒内の生体組織に対して電気刺激が可能である。特に、より堅牢性に優れた多層グラフェンを用いることで[2]、神経線維に対して巻き付く神経インターフェースとしての活用にも着手しつつある。以上のように、臓器の立体性に起因する組織形成、計測および刺激の難しさに対して本手法は有効であり、バイオデバイスの可能性を広げうると期待される。

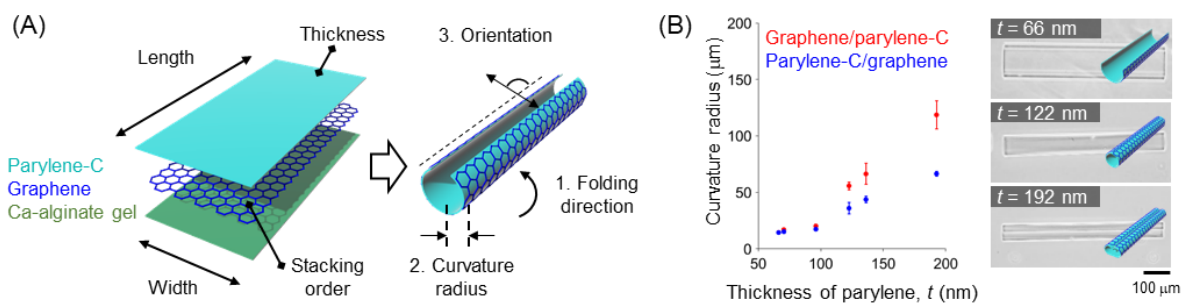


Fig.1 (A) Schematics of self-folding film with its parameters. (B) Control over the curvature radius which depends on the thickness of parylene-C and the stacking order of graphene and parylene-C.

[1] T. Teshima *et al.*, *Nano Lett.*, 19, 461 (2019) [2] T. Goto *et al.*, *AIP Advances*, 12, 075002 (2022) [3] K. Sakai *et al.*, *Nanoscale. Horiz.*, 8, 1529 (2023), [4] K. Sakai *et al.*, *Adv. Funct. Mater.*, 33, 2301836 (2023)

多粒子格納型デジタルイムノアッセイ法によるノロウイルス検出系開発

Development of Norovirus Detection System Based on Multiparticle Concentrated

Digital Immunoassay

産総研¹ ○安浦 雅人¹, 芦葉 裕樹¹, 堀口 諭吉¹, 福田 隆史¹AIST¹, °Masato Yasuura¹, Hiroki Ashiba¹, Yukichi Horiguchi¹, Takashi Fukuda¹

E-mail: yasuura-masato@aist.go.jp

ウイルス感染症に対する社会の強靱性『レジリエンス』向上には、高感度・迅速性を高いレベルで両立したウイルス検出手法の開発が必要となる。本研究では、我々が開発してきた磁性粒子をベースとするイムノアッセイ技術にデジタル検出の技術を取り入れた、多粒子格納型デジタルイムノアッセイ(MCDIA)に基づいて、ノロウイルス (NoV) 検出系の開発に取り組んだ。

2種の抗NoV抗体を用いて構築した、MCDIAの検出系模式図をFig. 1に示す。ターゲットとしてNoV様粒子 (NoVLP, G II.4, 0-6000 particles/μL) を用い、抗NoV抗体修飾磁性粒子 (AMP, 5×10^5 particles/μL), ビオチン修飾抗NoV抗体, ストレプトアビジン標識β-galactosidase (β-gal)を順次反応させ、AMPとβ-gal標識抗体でターゲットを挟み込んで計測するサンドイッチアッセイ型の検出系である。各反応間で磁気スタンドを用いて未反応物を洗い流し、AMPと酵素標識抗体でサンドイッチされたNoVLPを、蛍光基質であるresorufin β-D-galactopyranoside (RGP)溶液に分散、直ちにマイクロウェルアレイ (以下、アレイ) に封入した。ウェル中でRGPが蛍光を呈するresorufinに分解され、個々のウェルについて蛍光の有無を判定、高感度なデジタル検出を行う。このとき、デジタルELISA等の磁性粒子を用いるデジタルアッセイと異なり、ウェル1つに対し多数の磁性粒子を収容可能なウェルサイズと磁性粒子量の設計により、より高速に検出対象を捕集・濃縮し、デジタル検出することを可能にしている。アレイへの封入後、反応時間5分が経過してから蛍光顕微鏡にてアレイを蛍光観察し、蛍光発光を示す陽性ウェルを計数した。

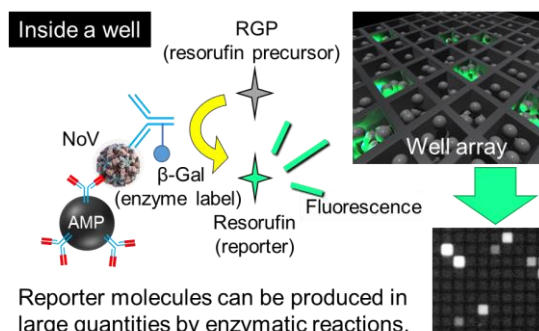


Fig. 1 Schematic of MCDIA for NoV.

Fig. 2に、構築したMCDIAによるNoVLP検出の結果を示す。手技においてNoVLP 60 particles/μLからの検出に成功し、同ロットのNoVLPサンプルをデジタルELISA検出系(Simoa)で測定したものに比して、ほぼ同程度の時間で1桁優る検出限界を達成した。本検出系を自動化装置に実装して測定したところ、同様にNoVLP 60 particles/μLからの検出に成功した。更に、洗浄工程等のプロトコルの改善により、検出感度を維持した所要時間の短縮に成功し、手技において約1/4である30分程度まで所要時間を短縮することに成功した。

[謝辞] 本成果の一部は、NEDO 委託業務(JPNP19005)、JST/JICA SATREPS JPMJSA2201の中で得られました。本成果の一部は、JSPS 科研費 JP21H01466の支援によるものです。本研究に用いたNoVLPの一部は、国立感染症研究所より提供を受けた培養系で生成しました。マイクロウェルアレイチップの作製にあたり、技術的支援を頂きました産総研の小林健 博士、岡本有貴 博士に感謝申し上げます。

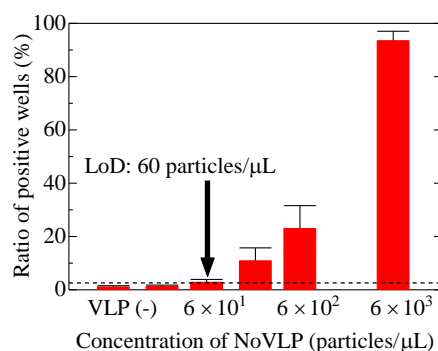


Fig. 2 Result of NoVLP detection.

COMSOL 有限要素解析法を用いた高感度 Si ナノワイヤバイオセンサの最適な構造の予測

Prediction of Optimal Structures for High-Sensitivity Si Nanowire Biosensors Using

COMSOL Finite Element Analysis

群馬大院理工¹, 群馬大院医², SympaFit Inc.³, 東京大院工⁴, 帝京平成大⁵○張慧¹, 阿部真優菜¹, (D)大澤郁弥¹, (D)邱亜威¹, 大嶋紀安², 加治佐平³, 坂田利弥⁴, 和泉孝志^{2,5}, 曾根逸人¹○Hui Zhang¹, Mayuna Abe¹, Fumiya Osawa¹, Yawei Qiu¹, Noriyasu Ohshima², Taira Kajisa³, Toshiya Sakata⁴, Takashi Izumi^{2,5}, Hayato Sone¹

E-mail: huizhang@gunma-u.ac.jp

【はじめに】Si ナノワイヤ (NW) バイオセンサは、電界効果トランジスタ (FET) 原理を利用して特異的な生体分子を高感度・迅速に検出できるため、次世代検査技術として注目を集めている。我々はこれまで、電子線リソグラフィ及び反応性イオンエッチングの条件を最適化することで SiNW の幅を 10.8 nm へ細線化し、濃度 6 aM の免疫グロブリン G (IgG) の特異的検出に成功した。そして、IgG などの生体分子の検出結果から、SiNW の細線化に伴う検出感度の大幅な向上を確認した[1]。しかし、SiNW バイオセンサの検出感度及び安定性に影響を与える要素として、幅の他に SiNW 内部の不純物濃度や高さも考えられる。実験では、不純物濃度、SiNW 幅、高さといったパラメータの相乗効果が感度を与える影響を解明するのは難しい。そこで本研究では、COMSOL 有限要素解析法を用いて SiNW バイオセンサの構造 (NW の幅、高さ)、及び NW 内部の不純物濃度が検出感度に及ぼす影響を理論的に計算した。これにより、生体分子を高感度に検出できる SiNW バイオセンサの最適な構造を予測した。

【方法】図 1 は、COMSOL 半導体モジュールにより構築した SiNW バイオセンサの 3 次元モデルを示しており、実際の実験で作製したセンサ構造とほぼ一致している。電極部パッドの寸法と厚さはそれぞれ 1 μm 、2 μm 、0.1 μm に設定し、SiNWs の長さ、本数はそれぞれ 14 μm 、5 本に固定した。SiNW の表面に自然酸化膜と空乏層からなる絶縁領域を設定し、電極間に電圧を印加した。ここでは、SiNW 内部の不純物濃度を 8.5×10^{16} から $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 、NW 幅を 10 から 150 nm、高さを 10 から 30 nm に変化させ、100 種類の組み合わせで特定の表面電荷密度の変化に応じたセンサの電気特性を計算した。これにより、SiNW バイオセンサの幅や高さ及び NW 内部の不純物濃度が検出感度を与える影響を解析して、高い抵抗変化率及び安定した電気特性を持つセンサ構造を予測した。

【結果と考察】表面電荷密度 $7.5 \times 10^{-5} \text{ C/m}^2$ における SiNW 幅、高さ及び不純物濃度とその抵抗変化率の計算結果を図 2 に示す。散布図の赤い点はより高い抵抗変化率を示しており、高感度検出の可能性が高い。これら計算結果から、SiNW 幅、高さ、不純物濃度をそれぞれ 10–20 nm、10–40 nm、 8.5×10^{16} – $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 程度に制御することで、生体分子を高感度に検出することが可能であると予測した。また、理論計算の信頼性を確認するため、NW 幅依存性の理論計算結果と、これまでに得た実験結果を比較したところ、一致する傾向が確認できた。具体的な解析結果は、講演会当日の発表で紹介する予定である。

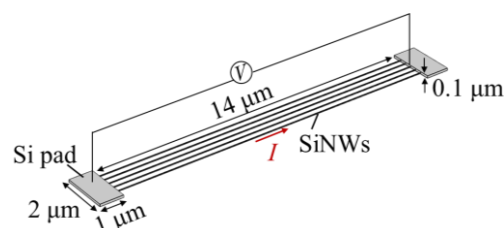


図 1 COMSOL Multiphysics 6.1 で構築された SiNW バイオセンサの三次元モデル

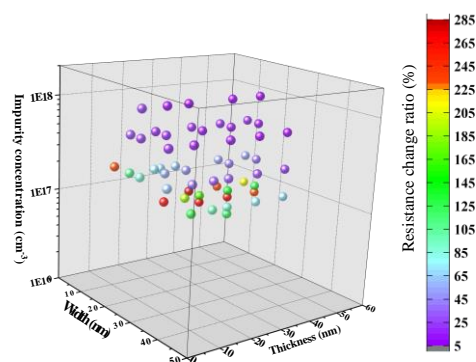


図 2 表面電荷密度 $7.5 \times 10^{-5} \text{ C/m}^2$ における SiNW 幅、高さ、不純物濃度と抵抗変化率の依存性の計算結果

【謝辞】本研究は JST 創発研究支援事業(課題番号:JPMJFR2159)、JSPS 科研費(課題番号 21K18071, 20K21879, 19K23598) の助成を受けて実施した。

【参考文献】 [1] H. Zhang et.al, ACS Appl. Mater. Interfaces, **15**, (2023), 19892–19903.

[2] H. Zhang et.al, Jpn. J. Appl. Phys., **63**, (2023), 03SP85 1-7.

バンコマイシンの高感度リアルタイム計測のための 表面プラズモンハイドロジェルアプタセンサ

Surface plasmon hydrogel aptasensor

for sensitive and real-time measurement of vancomycin

芝浦工大¹, 医科歯科大², 東京工科大³,

○當麻 浩司¹, 田口 結彩², 飯谷 健太², 荒川 貴博³, 三林 浩二²

Shibaura Inst. of Technology¹, Tokyo Medical and Dental Univ.², Tokyo Univ. of Technology³

○Koji Toma¹, Yui Taguchi², Kenta Iitani², Takahiro Arakawa³, Kohji Mitsubayashi²

E-mail: k-toma@shibaura-it.ac.jp

1. はじめに

メチシリン耐性黄色ブドウ球菌感染症の治療に有効なバンコマイシン(VCM)は、治療域が狭く(トラフ値:6.4–13.5 μM)、高濃度では急性腎障害を引き起こすリスクがある。そのため、薬物動態を詳細に把握することが重要であるが、現状ではラテックス免疫比濁法のような一度きりの測定手法しか存在せず、1回～数回程度の間欠的な検査に基づいて薬物動態を推定している。そこで本研究では、VCMの高感度かつリアルタイム測定を目指し、ハイドロゲルの3次元マトリックス中にペプチドアプタマーを固定化することで表面プラズモンポラリトンを有効に活用した、表面プラズモンハイドロジェルアプタセンサを開発した。

2. 実験方法

センサ基板の作製では、はじめにガラス基板上に Cytop と Au をこの順で成膜し、Au 基板を作製した。次に、Au 基板上に VCM と特異結合するペプチドアプタマーの自己組織化単分子膜を形成させた。本アプタマーは、2-methacryloyloxyethyl phosphorylcholine (MPC) と N-methacryloyl-(L)-tyrosinemethylester (MAT) の共重合体 PMM のリンカー分子としても機能するため、アプタマー修飾された Au 基板表面に PMM 薄膜をスピンコートにより塗布した。その後、アプタマーと光架橋剤である ammonium persulfate および ris-bipyridyl ruthenium (II)-dication を混合した溶液を滴下し、白色光を照射することで PMM の光架橋及びアプタマーの固定化を行った。以上の手順で作製したセンサ基板の評価実験では、センサ感応部にリン酸緩衝生理食塩水(PBS)、VCM 溶液の順に送液し、この時の VCM の結合を、入射光の反射率変化として検出した。また、測定後は PBS にて VCM を解離させて感応部の再生を行い、繰り返し測定を試みた。

3. 結果及び考察

センサ感応部に異なる濃度の VCM を送液したところ、VCM 濃度に応じた反射率変化が得られた。この結果を基にした検量線から決定した定量範囲は、治療域を含む 0.06–100 μM であり、PMM ハイドロジェルが無い場合に比し約 13 倍の高感度化を達成した。また PBS によるリンスだけで感応部が再生できることが示され、再現性の高い繰り返し計測やリンス不要のリアルタイム・連続計測が可能であった。以上、作製したハイドロジェルアプタセンサによる VCM の高感度リアルタイム測定の可能性が示された。今後は実サンプル中において、本センサを用いた VCM リアルタイム計測の可能性を検証していく。

非レクチンのタンパク質検出に向けた糖鎖高分子バイオセンシング

Glycopolymer-biosensing for detection of non-lectin protein

産総研・環境創生¹ ○寺田 侑平¹, 青木 寛¹AIST EMRI¹ ○Yuhei Terada¹, Hiroshi Aoki¹

E-mail: y.terada@aist.go.jp

生体分子間の分子認識機構を利用して標的分子を検出するバイオセンサーは、標的分子を捕捉する材料が修飾された分子認識界面および標的分子の捕捉を信号に変換する検出部位の二つから構成されている。これまでは分子認識界面に抗体を採用し、検出部位の観点から新たな検出法の開発や高感度化を試みる研究が多くを占めていたが、本研究では分子認識界面に用いる材料からバイオセンサーの開発・改良にアプローチする。我々はその材料として、糖鎖を高分子の側鎖に提示した人工の合成高分子「糖鎖高分子」を用いる。高分子をベースとした構造のため、熱や pH 変化を含む刺激に対して耐久性が高く、簡便な手法で大量合成が可能であることから抗体などの変性が懸念される材料の代替として有用である。また、高分子合成技術の発展に伴い nm 規模の精密な合成が可能になったことから、バイオセンサー表面の精密設計による高感度化などの検出機能向上が期待される。特に表面プラズモン共鳴 (SPR) を用いたセンサーは、分子認識界面の膜厚などが検出感度に寄与するため糖鎖高分子との相性が良好である。つまり、精密設計された糖鎖高分子と SPR の組み合わせによってこれまで検出できなかった生体分子の検出が可能になると考えている。しかしながら、糖鎖高分子を用いた生体分子認識に関する研究のほとんどは糖鎖認識性タンパク質 (レクチン) を対象としており、糖鎖の分子認識については未知な部分が多く残っている。本研究では糖鎖による認識の前例がないタンパク質、すなわち非レクチンの検出を可能にする糖鎖高分子に基づいた分子認識界面の創造を目指し、その糖鎖高分子構造の探索および分子認識との相関について明らかにする (図 1)。

糖鎖の種類、高分子主鎖に対する導入率および高分子主鎖の長さが異なる糖鎖高分子を合成し、光学的手法によって金属表面における分子間相互作用をスクリーニングできる SPR イメージング (SPRi) によって非レクチンと糖鎖高分子界面の相互作用を網羅的に解析した。異なる設計で合成された糖鎖高分子それぞれに対して非レクチンが吸着した際の SPRi 応答から、より高感度な検出に有効な設計を導き出した。さらに、糖鎖高分子で構成された分子認識界面の構造と非レクチン認識の相関についても評価を行った。

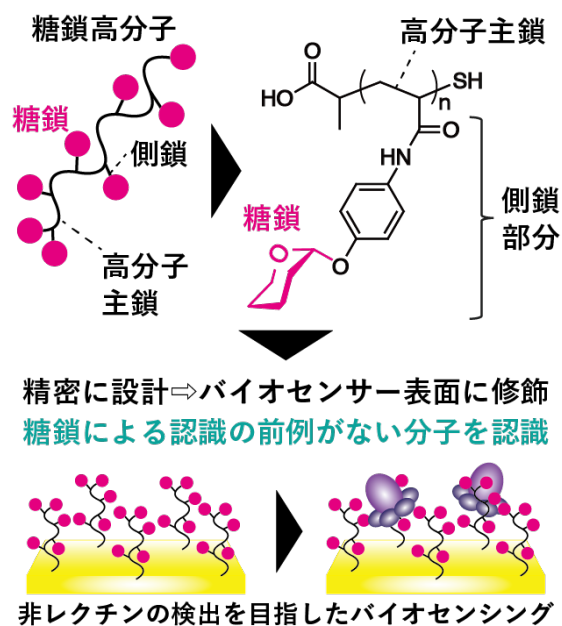


図 1. 糖鎖高分子および研究概要

ペプチド修飾した半導体カーボンナノチューブ薄膜バイオセンサの 作製と評価

Fabrication and Characterization of Biosensors with Peptide-modified Semiconducting Carbon Nanotube Thin Film

名大工¹, 産総研², 東工大³, 名大未来研⁴ ○(M1)永峯旭¹, 内山晴貴¹, 片浦弘道²,
本間千柊³, 早水裕平³, 大野雄高^{1,4}

Dept. of Electronics, Nagoya Univ.¹, AIST², Tokyo Tech.³, IMaSS, Nagoya Univ.⁴
○Asahi Nagamine¹, Haruki Uchiyama¹, Hiromichi Kataura², Chishu Homma³,
Yuhei Hayamizu³ and Yutaka Ohno^{1,4}

E-mail: yohnno@nagoya-u.jp

【はじめに】半導体カーボンナノチューブ(CNT)薄膜は高い移動度や機械的柔軟性を備え、高感度なフレキシブルバイオセンサの実現が期待できる。特定の生体分子を選択的に検出するためには、CNTの表面修飾が重要である。ペプチドはアミノ酸配列の設計により高い選択性を付与できる。本研究では、ビオチン化ペプチドを修飾した半導体CNT薄膜バイオセンサを作製し、ストレプトアビジン(SA)を検出した結果について報告する。

【実験】Fig. 1に示すLiquid gate型の半導体CNTバイオセンサを作製した。はじめに、Si/SiO₂基板上にソース・ドレイン電極(Ti/Au = 1/100 nm)を形成し、基板表面にPoly-L-lysineを塗布した後、半導体CNTの分散液に浸潤することにより、高密度で均一な半導体CNT薄膜を成膜した。フォトリソグラフィと酸素プラズマエッチングによりCNTのパターニングを行った。チャネル長 L_{ch} は300 μ m、チャネル幅 W_{ch} は1 mmである。なお、素子作製プロセスにおいては、フォトレジスト等によるCNT表面の汚染を抑制するため、表面をAl₂O₃/PMMAで保護した。2種類のペプチド(Bio-SSS-Y3YおよびY3Y) [1]の水溶液(500 nM)を半導体CNT薄膜上に滴下し、1時間静置した。SA水溶液(1 fM~10 nM)を滴下し、素子特性の変化を調べた。

【結果】ドレイン電流(I_D) - ゲート電圧(V_{GS})特性のSA濃度依存性をFig. 2に示す。Y3Yを修飾した素子ではしきい値の変化 ΔV_{Th} は-3 mVであったのに対し、ビオチン化ペプチドBio-SSS-Y3Yを修飾した素子では、 ΔV_{Th} = 29 mVであった。この結果は、半導体CNT薄膜によってSAとビオチンの特異的吸着を検出できることを示唆している。

[1] H. Noguchi *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15**, 14058 (2023).

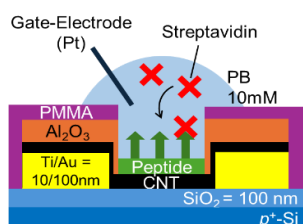


Fig. 1 Schematic of CNT TFT biosensor.

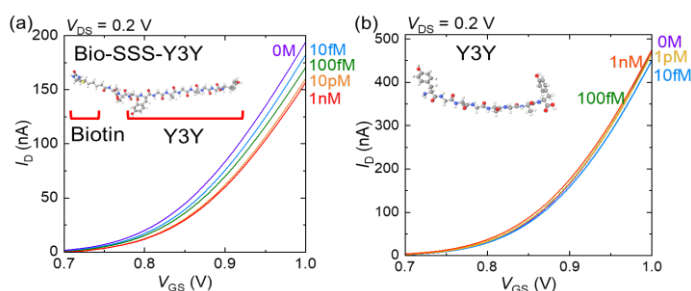


Fig. 2 I_D - V_{GS} characteristics of CNT biosensor with (a) Bio-SSS-Y3Y, (b) Y3Y.

パリティ時間対称性を用いた スマートコンタクトレンズ用電力伝送システム

Power transfer system for Smart Contact Lenses Using Parity-Time Symmetry

早稲田大学大学院情報生産システム研究科¹,

○(M2) 林 立喜¹, Azhari Saman¹, 三宅 文雄¹

Graduate School of Information Production and System, Waseda University¹,

○Tatsuki Hayashi¹, Azhari Saman¹, Miyake Takeo¹

E-mail: Tatsuki_Hayashi@fuji.waseda.jp

1. 研究背景と目的

近年、次世代ウェアラブルデバイスとしてスマートコンタクトレンズが注目されている。しかしながら、如何にしてデバイス駆動に必要な電源を確保するかという問題を有している。この課題に対し、三宅研究室では磁界共鳴結合を利用したワイヤレス給電技術をレンズ上に搭載回路設計や試作を実現してきた[1]。しかし、現状の送電側コイルと受電側コイル(コンタクトレンズ側)の有効な電送距離は 20mm 程度であるため、今後の実用性を考えると、より遠距離でのワイヤレス給電が可能なシステムを構築する必要がある。そこで、本研究は磁界共鳴結合を利用したワイヤレス給電の更なる送電距離増加を目的に、パリティ時間対称性(PT 対称性)を用いた電力送電システムの開発に取り組み、成果を得たので、その詳細を報告する予定である。

2. 実験方法と結果

一般的な共振結合回路は、送受信機共に LCR/LCR の共振回路が利用させるのに対し(従来型)、PT 対称性を用いた回路は、片方の回路に負性抵抗(-R)を加えた回路設計となる。今回、試作機を給電装置には、PCB ボード上に作製し(Fig.1)、その性能を評価した(Fig.2)。従来法では、距離 30mm の時点で給電効率が 11.2%を示すのに対し、PT 対称性では、21.2%の性能を実現できる。このことは、電力給電における損失を 10%改善したことを意味する。

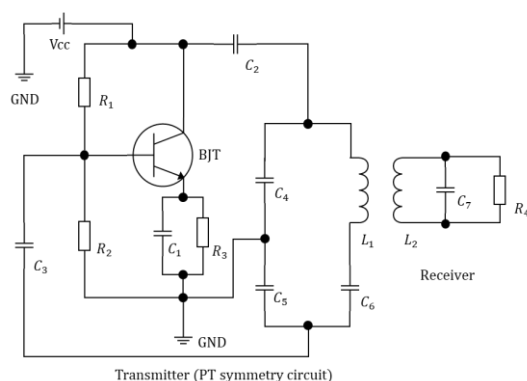


Fig.1 Equivalent circuit diagram

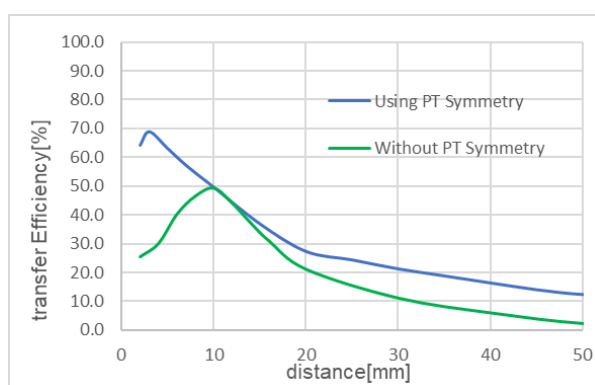


Fig.2 Comparison of Transfer Efficiency

Reference

[1] T. Taiki, et.al, Advanced Materials Technologies, 4, 1800671 (2019).

両面ナノチューブ膜を介した細胞間物質輸送システムの開発

Direct transfer between cells via double-sided nanotube membranes

早稲田大学大学院情報生産システム研究科¹, ○(M2)水口 侑衣子¹, (D)Bowen Zhang¹, (D)小山 和洋¹,

(D)Bingfu Liu¹, (M2)Rongtao Zhang¹, (M2)Zhouji Wu¹, (M2)Shuxin Lin¹, 三宅 文雄¹

Graduate School of Information Production and System, Waseda Univ¹, Yuiko Mizuguchi¹, Bowen Zhang¹,

Kazuhiro Oyama¹, Bingfu Liu¹, Rongtao Zhang¹, Zhouji Wu¹, Shuxin Lin¹, Takeo Miyake¹

E-mail: mizuguci56212@akane.waseda.jp

【研究背景と目的】

細胞/細胞間のコミュニケーションは、細胞外および細胞内を経由した生化学物質の輸送によって実現されている。特に、細胞/細胞間を直接つなぐ脂質分子膜で出来たトンネリングナノチューブの発見は、小分子のみではなく大きな分子(タンパク質やミトコンドリアなどの細胞小器官)も情報物質に成り得ることが明らかになった[1]。当研究室では、金属と機能性分子で構成される複合ナノチューブを開発し、本ナノチューブスタンプを用いて細胞内への物質導入に成功してきた[2, 3, 4]。本研究では、金属製ナノチューブを膜の両面に作製した機能性薄膜を開発し、さらに、両サイドのナノチューブに対し細胞を刺入し、それと同時に、物質の輸送が可能な細胞内輸液システムを構築することに挑戦し、一定の成果を得たので、その詳細を報告する。

【実験方法と結果】

市販のトラックエッチドポリカーボネート膜に、無電解めっきとドライ・ウェットエッチングを施すことにより両面ナノチューブ膜を作製した。このナノチューブ膜をガラスチューブに

取り付けたナノインジェクターを完成させた。ここでは、間葉系細胞 (MSC) をソース細胞とし、ソース細胞内ミトコンドリア(MitoBright LT Green で染色)をヒト皮膚線維芽細胞 (NB1RGB) に輸送することに成功した(Fig.2)。これを実現させるために、圧力や温度制御などの各種機構を導入したシステムを構築したので、当日はその詳細を報告する予定である。本研究は、JST さきがけ、METI Go-Tech、文部科学省 ARIM, FAIS の助成を受けた。

[1] Vignais. M, et.al., Stem Cells International, 1, 6917941, 2017

[2] Zhang. B., et.al., Scientific Reports, 9, 6806, 2019.

[3] Zhang. B., et.al., Small Science, 1, 2100069, 2021.

[4] Zhang. B., et.al., Anal Chem, 96, 8349, 2024.

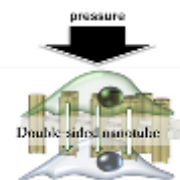


Fig.1 Intracellular mitochondrial transport using a double-side nano-injector

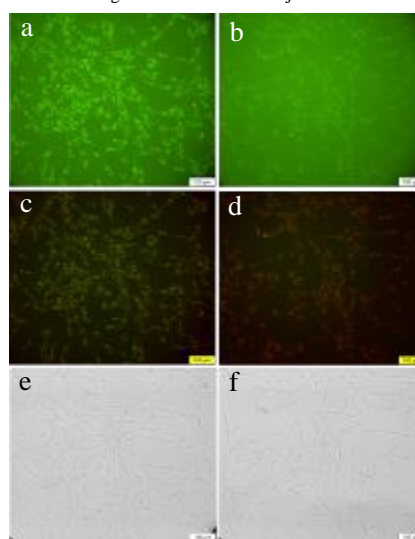


Fig. 2 (a) Fluorescence image of NB1RGB transporting MSC mitochondria (green), (c) merged image of NR1RGB mitochondria (red) and (a) and (e) brightfield image, (b) green fluorescence image of NB1RGB without mitochondria injection (d) NB1RGB mitochondria and (b) merged image with (a) and (f) brightfield image

CS コードシェアセッション | 一般セッション(口頭講演): 【CS.13】 13.7 化合物及びパワーデバイス・プロセス技術・評価、15.4 III-V族窒化物結晶のコードシェア

[16p-A22-1~22] CS.13 13.7 化合物及びパワーデバイス・プロセス技術・評価、15.4 III-V族窒化物結晶のコードシェア

[16p-A22-1]

コンタクトレス P E C エッチングを用いた GaN ナノワイヤ作製における UVA 光の効果

○古内 久大^{1,2}、本久 順一^{1,2}、佐藤 威友² (1.北大院情、2.北大量集セ)

[16p-A22-2]

N 極性 GaN に及ぼすドライエッチングの台座の影響

○三島 秀治郎¹、中村 大輝¹、新海 聡子¹ (1.九工大院)

[16p-A22-3]

N 極性 AlN 上の GaN のコヒーレント成長に向けた MOVPE 成長の条件改善

○(M2)古橋 樹¹、プリストフセク マーコス²、楊 旭² (1.名大院工、2.名大未来研)

[16p-A22-4]

N 極性 GaN/AlGaN/AlN 高電子移動度トランジスタのリーク電流が絶縁破壊電圧に及ぼす影響

○(M2)Zazuli Hiyama Aina¹、藤井 開¹、仁ノ木 亮祐¹、平田 靖晃¹、木本 大星¹、倉井 聡¹、岡田 成仁¹、田中 敦之²、新田 州吾²、本田 善央²、天野 浩²、山田 陽一¹ (1.山口大創成科学、2.名古屋大未来研)

[16p-A22-5]

ウェハ接合と裏面プロセスを用いた n-GaN N 極性面上オーミック電極形成

○(M1)藤家 智希¹、梁 剣波¹、末光 哲也²、重川 直輝¹ (1.大阪公大工、2.東北大)

[16p-A22-6]

高出力密度を有する N 極性 GaN/InAlN HEMT の開発

○早坂 明泰¹、吉田 成輝¹、向井 章¹、眞壁 勇夫¹、辻 幸洋¹、牧山 剛三¹、中田 健¹ (1.住友電工)

[16p-A22-7]

N/Mg イオン注入法を用いた縦型 GaN ジャンクションバリアショットキーダイオードの作製及び電気特性評価

○権 熊¹、伊藤 佑太¹、田中 敦之²、渡邊 浩崇²、本田 善央^{2,3,4}、天野 浩^{2,3,4} (1.名大院工、2.名大未来研、3.名大Dセンター、4.名大IAR)

[16p-A22-8]

[第56回講演奨励賞受賞記念講演] Mg イオン注入 p-GaN における注入領域および拡散領域の N イオン連続注入による補償ドナー濃度低減効果

○角田 健輔¹、片岡 恵太²、成田 哲生²、堀田 昌宏^{1,3}、加地 徹^{1,3}、須田 淳^{1,3} (1.名大院工、2.豊田中研、3.名大未来研)

[16p-A22-9]

[第56回講演奨励賞受賞記念講演] Mg チャネリングイオン注入および超高压アニールを用いて作製した縦型 GaN JBS ダイオードにおける電流-電圧特性の注入量依存性

○北川 和輝¹、Maciej Matys²、上杉 勉²、堀田 昌宏^{1,2}、加地 徹²、須田 淳^{1,2} (1.名大院工、2.名大未来研)

[16p-A22-10]

OVPE法を用いた Mg イオン注入 GaN の大気圧活性化手法の提案

○宇佐美 茂佳¹、伊藤 佑太²、香川 美幸¹、横井 創吾¹、田中 敦之³、滝野 淳一⁴、隅 智亮⁴、今西 正幸¹、伊藤 瞭太⁵、秦 雅彦⁶、吉村 政志⁷、岡山 芳央⁴、本田 善央³、天野 浩³、森 勇介¹ (1.阪大院工、2.名大院工、3.名大未来研、4.パナソニックホールディングス(株)、5.住友化学(株)、6.伊藤忠プラスチックス(株)、7.阪大レーザー研)

[16p-A22-11]

p型GaN表面に発生する電荷についての検討

○焦 一寧¹、高橋 尚伸¹、島崎 喬大¹、佐藤 威友¹、赤澤 正道¹ (1.北大量集センター)

[16p-A22-12]

[第56回講演奨励賞受賞記念講演] 分布型分極ドーピングによる AlN 系縦型p-nダイオードの作製

○隈部 岳瑠¹、吉川 陽^{2,3}、川崎 晟也¹、久志本 真希¹、本田 善央^{3,4,5}、新井 学³、須田 淳^{1,3}、天野 浩^{3,4,5} (1.名大院工、2.旭化成、3.名大IMaSS、4.名大Dセンター、5.名大IAR)

[16p-A22-13]

SiドーパAlNショットキーバリアダイオードにおける順方向リーク電流の解析

○佐々木 一晴¹、廣木 正伸²、熊倉 一英²、平間 一行²、谷保 芳孝²、中野 義昭¹、前田 拓也¹ (1.東大工、2.NTT物性研)

[16p-A22-14]

AlN MESFETの高温特性評価

○廣木 正伸¹、平間 一行¹、熊倉 一英¹、谷保 芳孝¹ (1.NTT物性研)

[16p-A22-15]

Al-rich AlGaInマルチチャネルFin構造の作製と評価

○小坂 鷹生¹、上野 耕平¹、藤岡 洋¹ (1.東大生研)

[16p-A22-16]

MOVPE 法で成膜したAlN 基板上の格子整合AlN/GaN HEMT の動作実証

○李 太起¹、吉川 陽^{1,3}、隈部 岳瑠²、杉山 聖¹、新井 学³、須田 淳^{2,3}、天野 浩^{2,3} (1.旭化成、2.名大院工、3.名大IMaSS)

[16p-A22-17]

高AlNモル分率AlGaIn/GaNデュアルゲートHEMTの電気的特性

○安藤 裕二^{1,2}、高橋 英匡¹、牧迫 隆太郎¹、分島 彰男³、須田 淳^{1,2} (1.名大院工、2.名大未来研、3.熊本大)

[16p-A22-18]

GaN/AlGaIn/GaNダブルヘテロ構造の縦型PND構造におけるアバランシェ降伏の確認

○小久保 瑛斗¹、渡邊 浩崇²、出来 真斗³、田中 敦之²、新田 州吾²、本田 善央^{2,3,4}、天野 浩^{2,3,4} (1.名大院工、2.名大IMaSS、3.名大Dセンター、4.名大高等研究院)

[16p-A22-19]

AlGaIn/GaNヘテロ界面でのキャリア輸送特性と欠陥分布

○角谷 正友¹、今中 康貴¹、中野 由崇²、竹端 寛治¹ (1.物材機構、2.中部大)

[16p-A22-20]

AlGaIn/GaN二次元電子ガスにおけるドリフト速度-電界特性の温度依存性

○若本 裕介¹、河原 孝彦²、吉田 成輝²、牧山 剛三²、中田 健²、前田 拓也¹ (1.東大工、2.住友電気工業株式会社)

[16p-A22-21]

ScAlN混晶の分極反転におけるSc組成および格子拘束の影響に関する理論検討

○秋山 亨¹、宮本 拓翔¹、河村 貴宏¹ (1.三重大院工)

[16p-A22-22]

エピタキシャルScAlN/AlGa_{0.5}N/GaNヘテロ構造の作製

○奥田 朋也¹、太田 隼輔²、河原 孝彦³、牧山 剛三³、中田 健³、前田 拓也⁴、小林 篤^{1,2} (1.理科大院先進工、2.理科大先進工、3.住友電工、4.東大院工)

コンタクトレスPECエッチングを用いた GaN ナノワイヤ作製における UVA 光の効果

Effect of UVA light on GaN nanowire fabrication using contactless PEC etching

北大情報科学研究院¹、北大量子集積エレクトロニクス研究センター²

○古内久大^{1,2}, 本久順一^{1,2}, 佐藤威友²

Graduate School of IST¹, RCIQE², Hokkaido University.

°Hisahiro Furuuchi^{1,2}, Junichi Motohisa^{1,2}, Taketomo Sato²

E-mail: furuuchi@rciqe.hokudai.ac.jp

[はじめに] 光電気化学(PEC)エッチングは電解液-半導体界面における光電気化学酸化と生成酸化物の溶解により進行する GaN(0001)面の低損傷加工手法で、マスクとの選択比が高く、常温常圧において低エネルギーで実施可能という特徴を有する[1]。また、外部回路や基板への配線が不要なコンタクトレス(CL)PEC エッチング[2]は、トレンチ構造やナノワイヤ(NW)作製に適用可能である[3]。しかし NW 作製の際、エッチングレートが低く目標 NW 高さ 1.5~1.8 μm を達成するために長時間の処理が必要、C 面の表面平坦性が悪いといった課題が存在する。今回、従来用いていた UVC 光に加えて UVA 光を照射することで、エッチングレートに改善が見られたので報告する。

[実験・結果] 試料として、C 面 n-GaN 基板($N_D=1.0\times 10^{18}$)上に i-GaN 層 2 μm 、n-GaN 層 100nm を MOVPE 成長した基板を用いた。まず EB リソグラフィ、Cr 蒸着(150nm)、リフトオフによりマスクを作製した。続いて室温の電解溶液($\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8\text{aq}$ (0.05M): KOHaq (0.02M) = 1:1)中に試料を浸置し、傾斜させた UVC 光(中心波長 260nm, 2.4mW/cm²)及び垂直な UVA 光(中心波長 360nm, 50mW/cm²)を 1 時間照射した。この工程では電解液中のペルオキソ二硫酸イオン($\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$)が UVC 照射により酸化力の強い硫酸ラジカル($\text{SO}_4^{\cdot-}$)へ分解され、GaN 表面を酸化する。更に生成した酸化被膜が KOH に溶解することでエッチングが進行する。一方、UVA は $\text{SO}_4^{\cdot-}$ の生成レートを変化させることなく基板表面の電子正孔対の生成を促進させる。本工程を 5 回繰り返した後、アルカリ溶液 (AZ400K, 85°C)中に試料を浸置した。また、従来条件との比較のため同様のマスク基板に垂直に UVC(4.0mW/cm²)のみを照射し CL-PEC エッチングを 6 回行った試料も用意した。図 1 にエッチング深さの時間変化を示す。従来条件で処理を行った試料は 6 回の CL-PEC エッチングで深さ 1.1 μm であったのに対し、UVA を照射した試料では UVC を弱めたにも関わらず、5 回の CL-PEC エッチングで深さ 2.3 μm に達した。尚深さ 100nm、2100nm 付近で傾きが減少しているのは、n-GaN, i-GaN におけるエッチングレートの差によると考えられる。図 2 に各試料の PEC エッチング実施後の SEM 像を示す。UVC のみ照射した試料と比較し UVA を照射した試料は NW 高が増加している一方、断面寸法が大幅に減少した。図 3 にアルカリ溶液処理後の試料の SEM 像を示す。最終的に A 面ファセットを有する、高さ 2.31 μm 、断面寸法 154nm の NW 形成に成功した。両者の断面寸法の差は、UVA 照射により C 軸方向に限らず NW 側面においても陽極酸化反応が促進された結果であると考えられる。発表ではより微細なマスクを用いた NW 作製に加え、C 軸方向エッチングレート、NW 直径減少の UVA 強度依存性についても報告する。

[参考文献]

[1] D. H. van Dorp *et al.*, *J. Electrochem. Soc.* **156**, D371 (2009).

[2] F. Horikiri *et al.*, *Appl. Phys. Exp.* **12**, 031003 (2019).

[3] M. Shimauchi *et al.*, *Appl. Phys. Exp.* **14**, 111003 (2021).

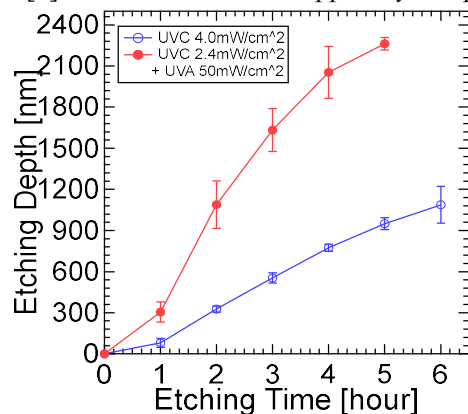


Figure1: Etching depth vs time in CL-PEC etching process.

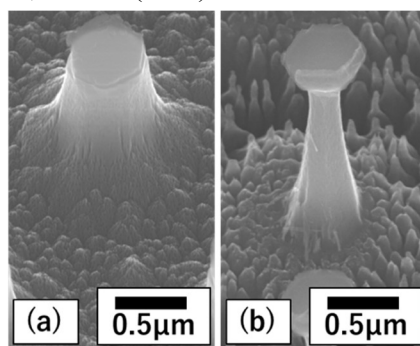


Figure2: Samples after CL-PEC etching.
(a):UVC 4.0mW/cm², (b):UVC 2.4mW/cm²+UVA 50mW/cm²

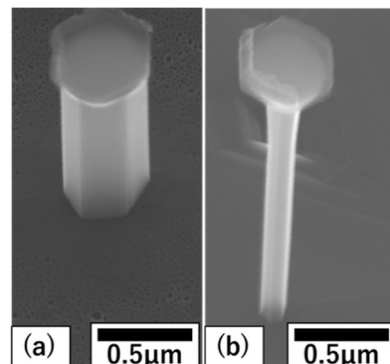


Figure3: Samples after alkaline treatment.
(a):UVC 4.0mW/cm², (b):UVC 2.4mW/cm²+UVA 50mW/cm²

N 極性 GaN に及ぼすドライエッチングの台座の影響

The effect of the coverplate during dry etching on N-polar GaN

九工大 〇(M2) 三島 秀治郎, (B4) 中村 大輝, 新海 聡子

Kyushu Institute of Technology, °Hidejiro Mishima, Daiki Nakamura, Satoko Shinkai

E-mail: mishima.hidejiro397@mail.kyutech.jp

1. はじめに

N 極性面を利用した GaN HEMT は、従来の Ga 極性 GaN HEMT と分極方向が異なるため、高い動作周波数や低オン抵抗化といった点で多くの利点を持っている^{[1][2]}。しかし、これまで N 極性 GaN へのドライエッチングの影響を調査した報告例はほとんどない。また、エッチング装置内のカソード材料は、GaN エッチング後のピラー形成と密接に関連しており、極めて重要であることが知られている^[3]。そこで、本研究では N 極性 GaN に対して台座を変えてドライエッチングを行い、表面形状の変化の様子を評価した。

2. 実験方法

Si をドーピングした n-GaN 自立基板の N 極性面に Cl₂ ガスを用いて、Bias 電力 20W、ICP 電力 100W、プロセス圧力 1Pa の条件下で、台座を石英、SiO₂/Si および Si と変化させて ICP-RIE (誘導結合型プラズマ反応性イオンエッチング) を施した。台座として使用した SiO₂/Si は PE-CVD (プラズマ化学気相成長) を用いて Si 上に SiO₂ を堆積させることで作製した。エッチング後の試料の表面形状の観察には、SEM (走査電子顕微鏡) を使用した。

3. 実験結果および考察

エッチング後の試料を SEM で観察した結果を Fig.1 に示す。Fig.1(a)に示すように N 極性 GaN に石英台座を用いてエッチングを施すと大量のピラーが形成されることがわかる。次に

台座を SiO₂/Si 台座に変更させ、同条件で ICP-RIE を実施した。得られた結果を Fig.1(b) に示す。これより、SiO₂/Si を台座としてエッチングを施すと石英台座と比較してピラーの形状に大きな変化は見られないものの、生成するピラーの数が大幅に減少することがわかる。また、Si を台座として同様にエッチングを行った結果、Fig.1(c)に示すように、石英台座に比べてピラー密度が減少し、かつ、生成するピラーの形状も変化することが確認できる。これらの結果からドライエッチング時の台座によって N 極性 GaN のドライエッチング後の表面形態は大きく変化することがわかった。詳細は当日報告する。

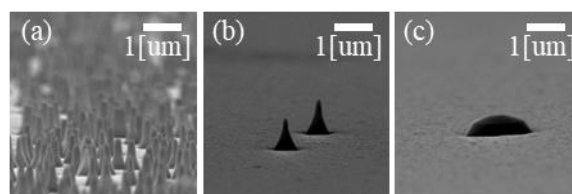


Fig.1 SEM images of N-polar GaN surface after ICP-RIE using Cl₂ plasma with (a) the quartz plate, (b) SiO₂/Si plate and (c) Si plate.

4. 参考文献

- [1] S. Rajan, M. Wong, Y. Fu, F. Wu, J. S. Speck and U. K. Mishra : Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005) L1478.
- [2] Rakoski A, Diez S, Li H, Keller S, Ahmadi E, Kurdak Ç : Appl Phys Lett. 114, 162102 (2019)
- [3] T. Meyer, C. Petit-Etienne and E. Pargon : J. Vac. Sci. Technol. A 40, 023202 (2022)

N 極性 AlN 上の GaN のコヒーレント成長に向けた MOVPE 成長の条件改善

Improvement of MOVPE growth for N-polar GaN coherent growth on AlN

名大院工¹, 名大 IMaSS² ○(M2)古橋 樹¹, プリストフセク マーコス², 楊 旭²

Nagoya Univ.¹, Nagoya Univ. IMaSS², ○(M2)Itsuki Furuhashi¹, Markus Pristovsek², Xu Yang²

E-mail: furuhashi.itsuki.r2@s.mail.nagoya-u.ac.jp

N-polar high electron mobility transistors (HEMT) offer intrinsic advantages like high thermal conductivity of AlN buffer and high polarization contrast without the need of a top barrier layer. Previously, we reported on N-polar AlN and GaN growth on sapphire in a showerhead type Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy (MOVPE) which resulted in smooth surfaces. With 5-6 nm GaN growth coherently on AlN gave in sheet carrier density $\sim 3.5 \text{ cm}^{-2}$ but low electron mobility $< 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. This low mobility is probably limited by interface states, dislocation density, and interface roughness (IR).^[1]

Increasing the GaN channel thickness rather reduced the mobility, opposite to previous work on bulk AlN^[2] (Fig.1). We suspect the onset of relaxation (Fig.2) which happened much early for us probably because of the higher dislocation density in N-polar AlN on sapphire. Therefore, we must improve the AlN quality and also the interface. For this, we investigated different V/III ratios and growth temperature of AlN and GaN. The carbon and oxygen density in GaN using trimethylgallium (TMGa) and triethylgallium (TEGa) was investigated with different growth temperature from 1100°C to 750°C by secondary ion mass spectroscopy (SIMS). While oxygen in GaN was 10^{17} cm^{-3} , Carbon incorporation increased with decreasing temperature by using TMGa, while there was a maximum at 850°C by using TEGa. The behaviour of AlN is more complex, due to the gas phase reactor and roughening at most conditions.

Currently, the best sample's sheet carrier density is $\sim 3.8 \text{ cm}^{-2}$ and electron mobility is $96 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ at room temperature.

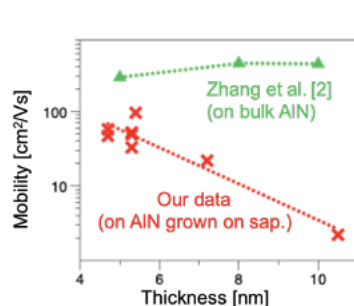


Fig.1 mobility of thin GaN channels on N-AlN

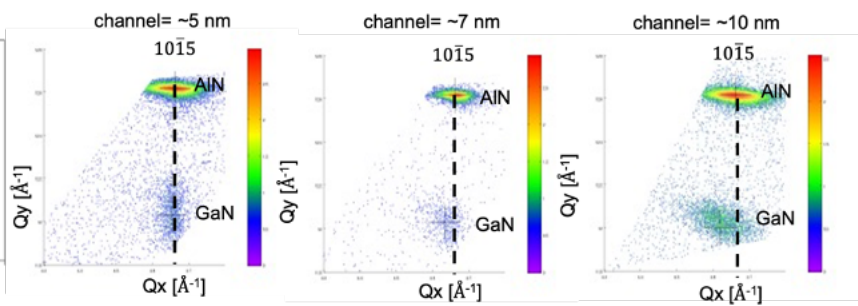


Fig.2 GaN relaxation with thicker channel layer

Literature : [1] U. Singisetti et al., Appl. Phys. Lett. 101, 012101 (2012)

[2] Z. Zhang et al., Appl. Phys. Lett. 121, 082107 (2022)

N 極性 GaN/AlGaN/AlN 高電子移動度トランジスタの リーク電流が絶縁破壊電圧に及ぼす影響

Effect of leakage currents on breakdown voltage in N-polar GaN/AlGaN/GaN High Electron Mobility Transistor

○ (M2)Aina Hiyama Zazuli¹, (M2)藤井 開¹, (M1)仁ノ木 亮祐¹, (B)平田 靖晃¹,
(M1)木本 大星¹, 倉井 聡¹, 岡田 成仁^{*1}, 田中 敦之², 新田 州吾²,
本田 善央², 天野 浩², 山田 陽一¹

Grad. School of Sci. & Tech. for Innovation, Yamaguchi Univ.¹, Nagoya Univ. IMASS²

°A. H. Zazuli¹, K. Fujii¹, R. Ninoki¹, N. Hirata¹, T. Kimoto¹, S. Kurai¹, N. Okada^{*1}, A. Tanaka²,
S. Nitta², Y. Honda², H. Amano², and Y. Yamada¹

E-mail: nokada@yamaguchi-u.ac.jp

我々の研究室では高電子移動度トランジスタの高耐圧・高性能化に向けて AlN を下地層とした N 極性 GaN/AlGaN/AlN ヘテロ構造の高電子移動度トランジスタ(HEMT)の研究を行っている。N 極性 GaN チャンネル層を最上層とした構造の利点として容易に低抵抗のオーミックコンタクトの形成が可能であり、高い熱伝導率を持つ AlN を下地とすることで高耐圧化を可能とするといわれている。しかしながら、HEMT のピンチオフが不十分であり、リーク電流が従来の AlGaIn/GaN 構造のものとは比べ高くなる傾向があることは現在の課題となっている。本研究では N 極性 GaN チャンネル HEMT のリーク電流が絶縁破壊電圧に与える影響について考察を行ったので報告する。

有機金属化合物気相成長法を用いてサファイア基板上に N 極性面 GaN/ Al_{0.9}Ga_{0.1}N/AlN ヘテロ構造を成長させ、HEMT 加工による GaN チャンネルのダメージを防ぐためプラズマ励起化学気相成長法を用いて SiO₂ を 2 nm 堆積させた。Fig. 1 に本研究で用いた HEMT の構造を示す。ソース及びドレインのオーミック電極として Ti/Al/Ti/Au を、ゲートのショットキー電極として Ni/Au を用いた。N 極性 GaN チャンネル HEMT のピンチオフ時 ($V_g = -5$ V、ドレイン電圧 $V_d = 10$ V) のリーク電流と絶縁破壊電圧は平均でそれぞれおよそ 11.2 mA/mm と 162.3 V であった。また Fig. 2 に示すようにピンチオフに十分なゲート電圧がかかっているとき ($V_g = -5$ V)、ドレイン電流はゲートショットキー接合の逆方向リークが支配的であることが分かる。よって、ドレインに高い電圧をかけた際、ゲートのリークが増加しゲートの電流密度の閾値に達することで絶縁破壊していると考えられる。また、リーク電流が大きいくほど絶縁破壊電圧が低くなる傾向にあることも分かったためゲートリークの低減は高耐圧化に必要であるといえる。

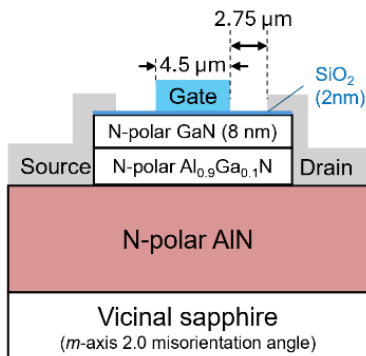


Fig. 1 Schematic diagram of N-polar GaN/AlGaIn/AlN HEMT

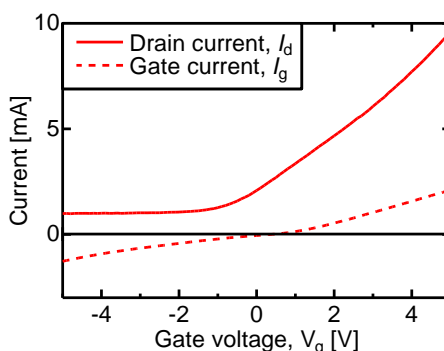


Fig. 2 I_d - V_g and I_g - V_g characteristic of N-polar GaN/AlGaIn/AlN HEMT at $V_d = 9.16$ V

[謝辞] 本研究の一部は科研費基盤 B(24K01363)、名古屋大学未来材料・システム研究所共同利用の支援を受けて実施したものである。

ウェハ接合と裏面プロセスを用いた n-GaN N 極性面上オーミック電極形成 Ohmic contact formation on N-polar n-GaN surfaces exposed by wafer bonding and back surface process

大阪公大工¹, 東北大², ○(M1)藤家 智希¹, 梁 剣波¹, 末光 哲也², 重川 直輝¹

Osaka Metropolitan Univ.¹, Tohoku Univ.², °Satoki Toka¹, Jianbo Liang¹, Tetsuya Suemitsu², Naoteru Shigekawa¹

E-mail: sk24300b@st.omu.ac.jp

【はじめに】N 極性面上窒化物 HEMT では、バックバリアの効果により Ga 極性面上デバイスを上回る RF 出力が実現されている[1]。窒化物半導体の Ga 極性面と支持基板のウェハ接合及び裏面プロセスにより、困難性が高いとされる N 極性方向への結晶成長[2]を行わずに N 極性面上のデバイス作製が可能と考えられる。本研究ではウェハ接合・裏面プロセスにより形成した n-GaN 層の N 極性面上にオーミック電極を形成・評価し、N 極性面上デバイス作製の可能性を検証した。

【実験方法】Si (111)基板上にバッファ層（層厚 300 nm）を介して成長された n-GaN 層（ $0.5 \sim 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、層厚 1 μm ）表面（Ga 極性面）を高抵抗 Si 基板（抵抗率 10 $\text{k}\Omega \cdot \text{cm}$ ）と表面活性化接合法により常温接合した。その後、研磨及びウェットエッチングにより Si 基板およびバッファ層を除去した。露出した N 極性面上に Ti/Al/Ti/Au を蒸着し、800 $^{\circ}\text{C}$ 、30 s の熱処理を経て円形電極の半径 200 μm 、電極間距離 $S = 5\text{--}50 \mu\text{m}$ の Circular Transmission Line Model (CTLM) 素子を作製した。円形電極の半径が伝搬長と比較して十分大きいという仮定の下で、室温における電極間抵抗の電極間距離依存性を解析し[3]、比接触抵抗及びシート抵抗を求めた。Ga 極性面上にも同様の手法で同一形状の CTLM 素子を作製し特性を比較した。

【実験結果】 $S = 5 \mu\text{m}$ の N 極性面上、Ga 極性面上 CTLM 素子の室温における電流-電圧 (I - V) 特性を素子の外観と合わせて Fig. 1 に示す。いずれの I - V 特性も直線性を示した。その勾配から求めた抵抗と電極間距離の関係を解析結果とあわせて Fig. 2 に示す。N 極性面上の比接触抵抗 ($1.3 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}^2$) は Ga 極性面上 ($4.7 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}^2$) と比較して~30 倍の高い値となった。今回の結果は、ウェハ接合及び裏面プロセスにより作製された N 極性面上にデ

バイス作製が可能と考えられること、N 極性面上のプロセス条件の検討が必要と思われることを示す。

【謝辞】本研究を実施するにあたり JSPS 科研費 JP24H00425 の支援を受けた。

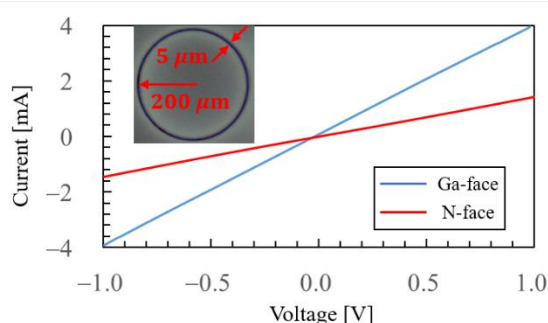


Fig. 1. I - V characteristics of CTLM devices on N- and Ga-polar surfaces with $S = 5 \mu\text{m}$ at room temperature. A fabricated CTLM device is also shown.

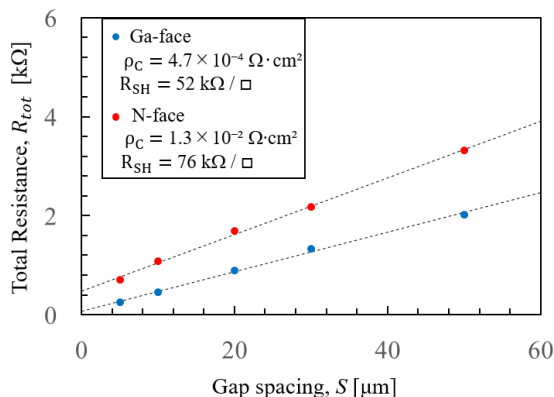


Fig. 2. Relationship between resistance and spacing between electrodes of CTLM devices on both surfaces. Results of fitting using a model [3] are also shown.

【参考文献】

- [1] S. Wienecke, et al., IEEE Electron Device Lett., **38**, 359 (2017).
- [2] M. Sumiya et al., J. Appl. Phys., **88**, 1158 (2000).
- [3] D. K. Schroder, "Semiconductor Material and Device Characterization," 3rd ed. John Wiley, 2006.

高出力密度を有する N 極性 GaN/InAlN HEMT の開発

Development of high-power-density N-polar GaN/InAlN HEMT

住友電工, °早坂明泰, 吉田成輝, 向井章, 眞壁勇夫, 辻幸洋, 牧山剛三, 中田健

Sumitomo Electric, °Akihiro Hayasaka, Shigeki Yoshida, Akira Mukai,

Isao Makabe, Yukihiro Tsuji, Kozo Makiyama, Ken Nakata

E-mail: hayasaka-akihiro@sei.co.jp

【はじめに】 GaN HEMT は無線通信向け高周波パワーデバイスとして広く使用されており、5.5G や 6G に向け高周波帯における出力密度の向上が求められている。しかし、一般に製品化されている Ga 極性 GaN HEMT は短ゲート構造において電子がバッファ側に回り込みドレインコンダクタンス(g_d)が増加するため、出力密度の向上が鈍化傾向にある。そこでバックバリア構造によりバッファ側への電子の回り込みを抑制できる N 極性 GaN HEMT が注目されている。N 極性 GaN HEMT はバックバリアに AlGaIn を用いる構造が一般的であるが、我々は更なる高出力密度化が可能な材料として高いシートキャリア密度(N_s)により電流密度を向上できる InAlN に着目している。ここでは、N 極性 GaN/InAlN HEMT において 28 GHz 帯で高出力動作を達成したので報告する。

【実験方法】MOCVD 法により作製した N 極性 GaN/InAlN 結晶上に Ti/Au のオーミック電極、Ni/Au のゲート電極を形成し、MIS 構造をもつ $L_g = 200$ nm、 $L_{sd} = 2.5$ μ m の N 極性 GaN/InAlN HEMT (Fig.1) を作製した。パルス IV 測定とロードプル測定によりデバイス特性を評価した。

【結果・考察】 ホール測定により得られた N_s は 2.9×10^{13} cm^{-2} であり、AlGaIn バックバリアでは実現困難な高い値が得られることを確認した。作製したデバイスのパルス IV 特性を Fig.2 に示す。ストレス電圧 $V_{gs} = -10$ V、 $V_{ds} = 10$ V においてコラプス率は 14.5%であった。Fig.2 より、 2.9×10^{13} cm^{-2} という高い N_s においても g_d の顕著な増加はなく、バックバリア構造によってバッファ側への電子の回り込みを抑制できたと考えられる。高 N_s により最大電流密度 2.6 A/mm が得られ、28 GHz 帯の飽和出力密度 12.8 W/mm を達成した(Fig.3)。

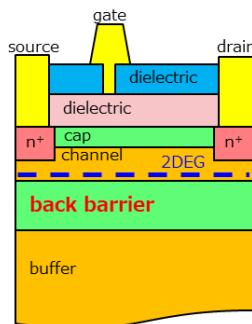


Fig.1 The structure of the N-polar GaN HEMT

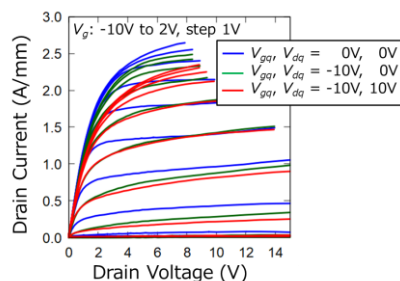
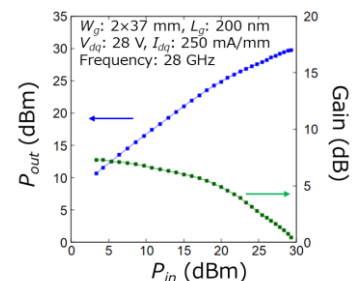


Fig.2 Pulse Ids-Vds characteristics

Fig.3 Measured P_{out} and Gain vs. P_{in} for the N-polar GaN HEMT

【謝辞】 この成果は、NEDO（国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構）の助成事業「ポスト 5 G 情報通信システム基盤強化研究開発事業」（JPNP 20017）の結果得られたものです。

N/Mg イオン注入法を用いた縦型 GaN ジャンクションバリアショットキーダイオードの作製及び電気特性評価

Fabrication and electrical properties of GaN vertical junction barrier Schottky diode using N/Mg ion-implantation

名大院工¹, 名大未来研², 名大Dセンター³, 名大IAR⁴

○権 熊¹, 伊藤 佑太¹, 田中 敦之², 渡邊 浩崇², 本田 善央^{2,3,4}, 天野 浩^{2,3,4}

Nagoya Univ.¹, IMASS Nagoya Univ.², D Center Nagoya Univ.³, IAR Nagoya Univ.⁴

○Woong Kwon¹, Yuta Itoh¹, Atsushi Tanaka², Hirotaka Watanabe², Yoshio Honda^{2,3,4}, and Hiroshi Amano^{2,3,4}

E-mail: kwon.woong@nagoya-u.jp

【背景】縦型 GaN パワーデバイス、その優れた物性上 PC 用 AC アダプタのような小電力のみならず大電力用としても有望である。また、ジャンクションバリアショットキーダイオード (JBSD) は、ショットキーバリアダイオード (SBD) と p-n 接合ダイオード (PND) の利点である低オン電圧、高速スイッチング、低逆方向リーク電流などの特性を有し、パワーデバイスとして活用されている。しかし、縦型 GaN JBSD を作製するためには、選択的ドーピング技術が必要となる。我々は N/Mg イオン注入を用いて縦型 GaN p-n 接合ダイオードを作製し、イオン注入された部分が p-n ダイオードの p 層として働くことを確認した[1]。本研究では、面内で選択的に N/Mg イオン注入を行うことで縦型 GaN JBSD を作製し、その電気特性を評価した。

【実験方法】貫通転位密度が 10^5cm^{-2} 以下の GaN 自立基板上に n-GaN ドリフト層 ([Si]: $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$, $13 \mu\text{m}$) を成長させた。選択的 p-GaN 領域を形成するために、JBSD のショットキー領域となる部分には、 $1\text{--}3 \mu\text{m}$ ピッチの L&S パターンを形成した。イオン注入 (I/I) は N→Mg の順で $5.8 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ のドーズ量、エネルギーは 30keV 、傾斜角 7° の条件で行った。マスクを除去した後、表面を保護するために 300nm の AlN を堆積させた。Mg ([Mg]: $\sim 3 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$, $\sim 0.8 \mu\text{m}$) の拡散及び活性化のために、大気圧 N_2 雰囲気中、 1300°C で 5 分間アニールした。AlN を除去した後、高温熱処理による表面ダメージを除去するために Cl_2 ガスを用いた ICP-RIE によりバイアスパワー 2.5W で 5 分間エッチングを行った。また、素子分離のため、ICP-RIE により $13.5 \mu\text{m}$ の垂直メサを形成した。JBSD のアノード電極のために、Ni/Au を蒸着し、 O_2 雰囲気中、 525°C で 10 分間アニールを行った。カソード電極はサンプルの裏面に Al を蒸着することで形成した。ポリイミドを用いてデバイスのパッシベーションを行った。I-V 測定及びエミッション顕微鏡 (EM) を用いて作製したデバイスの電気特性評価を行った。

【結果】EM により 2V の JBSD において n-GaN 領域のみに電流が流れることを確認し、熱電子放出モデルを用いて順方向 I-V 特性から JBSD とジャンクションバリア領域のない SBD の障壁高さ ($e\phi_{\text{bh}}$) を評価した。SBD の $e\phi_{\text{bh}}$ が 1.0eV であった反面、JBSD の $e\phi_{\text{bh}}$ はショットキー領域の幅を狭くすることによって $e\phi_{\text{bh}}$ が 1.18eV まで増加した。これはショットキー接合である細い n-GaN 領域が周りに存在する p-n 接合の内蔵電位により空乏化されたことが原因であり、JBS 構造が成り立っていると考えられる。また、 3V 付近で JBSD のオン抵抗減少とともに発光が確認された。これは PND 領域の立ち上がりによるものであり、オン抵抗は $1.2\text{--}1.4 \text{m}\Omega\text{cm}^2$ であった。さらに、逆方向 I-V 測定結果、JBSD の n-GaN 幅を狭くすることによって逆方向リーク電流が大幅に減少することが確認できた。JBSD の $I_{\text{on}}(1.2 \text{V})/I_{\text{off}}(-650 \text{V})$ は 10^9 であり、広い電圧範囲での高い on/off 比が達成された。本研究によって大気圧以下の従来プロセスでも JBS が作製可能であることが確認できた。

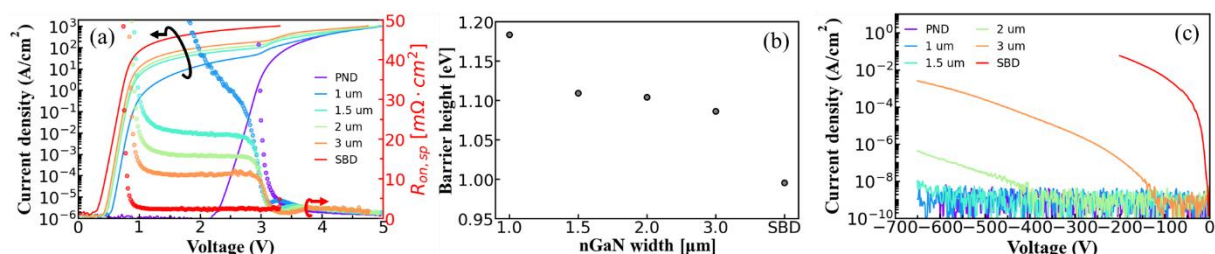


Fig.1. I-V characteristics of junction barrier Schottky diode. (a) Forward, (b) Calculated barrier height of SBD and JBSD, (c) Reverse.

【謝辞】本研究は、文部科学省「革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777」の助成を受けて行われた。

[1] Y. Itoh, *et al.* 71st JSAP spring meeting 2024, 24a-52A-5 (2024)

Mg イオン注入 p-GaN における注入領域および拡散領域の N イオン連続注入による補償ドナー濃度低減効果

Reduction of Compensating Donor Concentration of Implanted and Diffusion Regions by Sequential N-ion Implantation in Mg-implanted p-GaN

名大院工¹, 豊田中研², 名大未来研³

○角田健輔¹, 片岡恵太², 成田哲生², 堀田昌宏^{1,3}, 加地徹^{1,3}, 須田淳^{1,3}

Department of Electronics, Nagoya Univ.¹, Toyota Central R&D Labs., Inc.², Nagoya Univ. IMaSS³,

○Kensuke Sumida¹, Keita Kataoka², Tetsuo Narita², Masahiro Horita^{1,3}, Tetsu Kachi^{1,3}, Jun Suda^{1,3}

E-mail: sumida.kensuke.w7@s.mail.nagoya-u.ac.jp

GaN 縦型パワーデバイスの作製に必要な Mg イオン注入技術の確立に向けて、Mg イオン注入した p-GaN 中の補償ドナー濃度 (N_d) の低減は重要である。本研究グループは、Mg と N イオンを連続注入 (Mg+N-I/I) することで、Mg イオンのみ注入した GaN に比べて、Mg+N-I/I した GaN 中の N_d が低減することを報告した^[1]。一方で、Mg+N-I/I した GaN において、アニール条件依存性などの詳細は報告されていない。また、イオン注入した領域と、アニール中に Mg が深くに拡散した領域では、N イオン連続注入による N_d の低減効果が異なる可能性がある。そこで本研究では、Mg イオン注入 (Mg-I/I) および Mg+N-I/I した GaN に対し、注入領域と拡散領域におけるシートアクセプタ濃度 ($N_{a,sh}$) とシート補償ドナー濃度 ($N_{d,sh}$) のアニール時間依存性を調査した。

HVPE 成長 n^+ -GaN (0001) 基板上に、MOVPE 法で n -GaN ($[Si]=2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) 層を成長した試料を用意し、Mg イオンのみ、もしくは Mg、N イオンの順で多段注入 ($[Mg], [N] \sim 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, 300 nm-Box-profile) を行った。超高压アニールは 1300°C、窒素雰囲気 500 MPa で実施し、様々なアニール時間 (5, 15, 30, 60 分) で行った。MOVPE 法で p^+ -GaN コンタクト層 ($[Mg] \geq 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, 200 nm) を再成長した後に脱水素アニール (800°C, 10 min, 窒素雰囲気) を行った。次にサンプル四隅に電極 (Ni/Au/Ni) を形成し、電極部分以外の p-GaN 表面を ICP-RIE によって異なる深さ (225, 453 nm) でエッチングした。各ホール効果測定結果に対し 2 層ホール効果モデルを用いることで、イオン注入領域 (225~453 nm) と拡散領域 (453 nm~) のキャリア濃度を取得し、フィッティング解析^[2]によって $N_{a,sh}$, $N_{d,sh}$ を導出した。

Figure 1 に Mg 濃度 ($[Mg]_{sh}$), $N_{a,sh}$, $N_{d,sh}$ のアニール時間依存性を示す。 $N_{a,sh}$ は両条件とも短いアニール時間 (15 分) でも高い値を示した。拡散領域 (Fig. 1(b), (d)) においては、窒素連続注入によりアニール中の Mg 拡散が抑制されたことで、Mg-I/I に対し Mg+N-I/I した GaN の $N_{a,sh}$ は低い値を示した。また、注入領域において、Mg-I/I した GaN (Fig. 1(c)) では $N_{d,sh}$ は高い値を示した ($N_{d,sh}/N_{a,sh}=50\%$ (15 min)) が、Mg+N-I/I した GaN の注入領域 (Fig. 1(a)) においては、短いアニール時間 (5 分) でも $N_{d,sh}$ は低い値を示した ($N_{d,sh}/N_{a,sh}=20\%$)。二端子 I - V 特性評価では、Mg-I/I に比べて Mg+N-I/I した GaN では良好なオーミック特性を示した。N イオン連続注入によって、Mg-I/I した GaN 表面付近の高抵抗領域の抵抗が低減した可能性がある。以上のことから、N イオン連続注入は N_d 低減に効果的であることが示された。

本研究は文科省革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業の JPJ009777 の支援を受けた。また、名古屋大学天野・本田研究室より MOVPE 成長 n -GaN の提供を受けた。

[1] H. Sakurai *et al.*, Appl Phys. Express. **14**, 111001 (2021). [2] M. Horita *et al.*, JJAP. **56**, 031001 (2017).

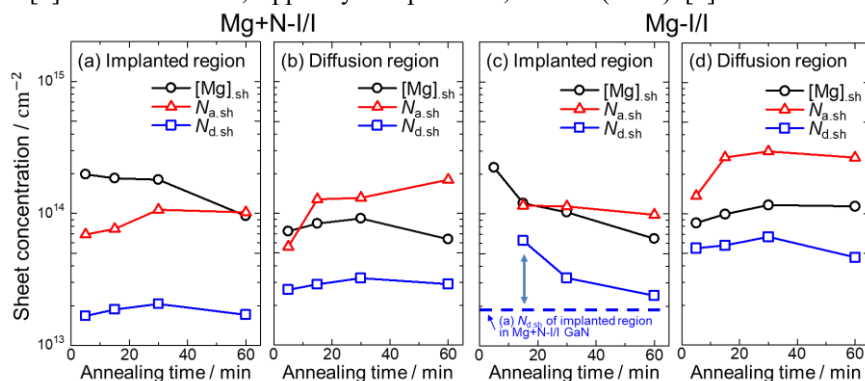


Figure 1. Sheet Mg concentration ($[Mg]_{sh}$) measured by SIMS, sheet acceptor concentration ($N_{a,sh}$) and sheet donor concentration ($N_{d,sh}$) for the implanted and (b) diffusion regions in Mg+N-I/I GaN, and (c) implanted and (d) diffusion regions in Mg-I/I GaN with various annealing time.

Mg チャネリングイオン注入および超高压アニールを用いて作製した 縦型 GaN JBS ダイオードにおける電流-電圧特性の注入量依存性

Current-voltage characteristics of GaN vertical JBS diodes fabricated by
channeled implantation of Mg ions and ultra-high-pressure annealing

名大院工¹, 名大未来研²

○北川 和輝¹, Maciej Matys², 上杉 勉², 堀田 昌宏^{1,2}, 加地 徹², 須田 淳^{1,2}

Nagoya Univ.¹, Nagoya Univ. IMASS², ○Kazuki Kitagawa¹, Maciej Matys²,

Tsutomu Uesugi², Masahiro Horita^{1,2}, Tetsu Kachi², and Jun Suda^{1,2}

E-mail: kitagawa.kazuki.s8@s.mail.nagoya-u.ac.jp

縦型 GaN パワーデバイスの実現に向けて、イオン注入による局所的 p 型化技術の確立が求められる。Mg イオン注入後に 1 GPa 程度の超高压で活性化アニール(UHPA)を行うことにより高い p 型活性化率を得られることが報告されており[1], UHPA のデバイス応用研究も報告され始めているが[2][3], 更なる高性能化に向けて作製プロセスの検討と工夫が重要である。本研究では、Mg イオンを GaN 結晶 c 軸方向に沿って注入し、より深くまでイオンを注入することができるチャネリングイオン注入[4]に着目し、異なる Mg イオン注入量で GaN JBS ダイオードの試作を行い電流-電圧特性の比較を行った。

試作 JBS ダイオードはアモノサーマル法により作製された n 型 GaN 自立基板上に、n 型 GaN ($N_{\text{drift}} = 2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 狙い)を MOVPE 法により成長した試料を用いて作製した。p 型領域を形成するための Mg イオン注入は、エネルギー 180 keV でのチャネリング注入に加えて、最表面への注入を目的とし 20, 90 keV でランダム注入を追加で行った。UHPA は窒素雰囲気下 1300°C, 500 MPa において 30 分間行い、その後、脱水素熱処理、電極形成等を行った。図 1 に試作したチャネリング注入 JBS ダイオードの構造とシミュレーションによる Mg の予測分布、電流-電圧特性を示す。p 型領域幅は 2 μm , p 型領域間隔 L_n は 1.0 μm から 3.5 μm を作製した。作製した JBS ダイオードは L_n に依存する特性を示し、いずれの L_n でも逆方向漏れ電流は、TFE に支配される単純な SBD に比べて大幅に低減された。 $L_n = 1.0 \mu\text{m}$ の時に R_{ON} が急激に大きくなったのは n 型領域が狭くなっていることを示しており、これは p 型活性化が不十分なことによる空乏層領域の拡大や注入 Mg の横方向拡散が原因であると考えられる。

また、図 2 に Mg イオン注入量を多く(約 3 倍)して作製した JBS ダイオードの SIMS 分析により得た Mg 分布(UHPA 後)と電流-電圧特性を示す。図 1 の結果に比べ、TFE による漏れ電流がより効果的に低減されていることがわかる。一方で、 $L_n = 1.5 \mu\text{m}$ の時に R_{ON} が急激に大きくなっており、Mg イオン注入量を多くしたことで n 型領域がさらに狭くなっていることを示していると考えられる。今後の課題として、更なる高性能化(低抵抗化)に向けた Mg 注入領域の活性化率向上および横方向拡散抑制が重要であると考えている。

【謝辞】本研究は、文部科学省「革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業」JPJ009777 の助成を受けたものです。

[1] H. Sakurai, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **115**, 142104 (2019). [2] M. Matys, *et al.*, Appl. Phys. Express **14**, 074002 (2021). [3] M. Matys, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **121**, 203507 (2022). [4] T. Nishimura, *et al.*, Appl. Phys. Express **14**, 066503 (2021).

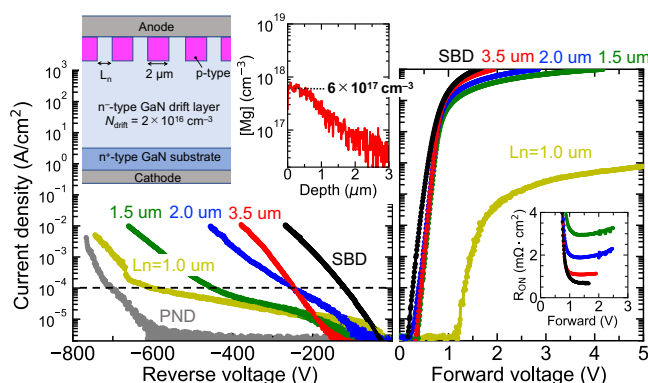


Fig. 1. Schematic structure and I - V characteristics of fabricated JBS diodes (Mg peak = $6 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$).

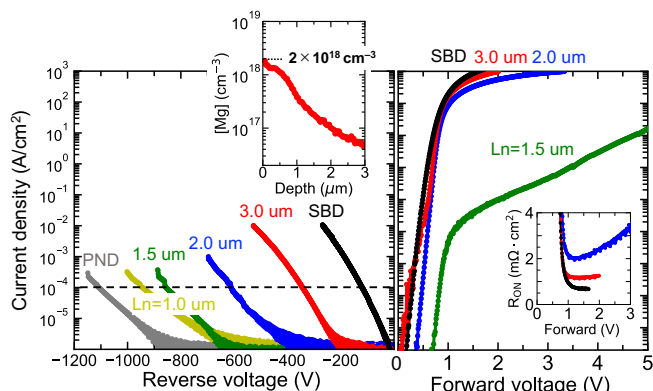


Fig. 2. I - V characteristics of fabricated JBS diodes (Mg peak = $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$).

OVPE 法を用いた Mg イオン注入 GaN の大気圧活性化手法の提案

Proposal of atmospheric pressure activation process for Mg-ion implanted GaN using OVPE method

阪大院工¹, 名大院工², 名大未来研³, パナソニックホールディングス(株)⁴, 住友化学(株)⁵,
伊藤忠プラスチック(株)⁶, 阪大レーザー研⁷

○宇佐美茂佳¹, 伊藤佑太², 香川美幸¹, 横井創吾¹, 田中敦之³, 滝野淳一⁴, 隅智亮⁴,
今西正幸¹, 伊藤瞭太⁵, 秦雅彦⁶, 吉村政志⁷, 岡山芳央⁴, 本田善央³, 天野浩³, 森勇介¹
Grad. Sch. Of Eng. Osaka Univ.¹, Nagoya Univ.², IMASS Nagoya Univ.³, Panasonic Holdings Corp.⁴,
Sumitomo Chemical Co., Ltd.⁵, Itochu plastics Inc.⁶, ILE Osaka Univ.⁷,

°S. Usami¹, Y. Ito², M. Kagawa¹, S. Yokoi¹, A. Tanaka³, J. Takino⁴, T. Sumi⁴, M. Imanishi¹, R. Ito⁵,
M. Hata⁶, M. Yoshimura⁷, Y. Okayama⁴, Y. Honda³, H. Amano³, Y. Mori¹

E-mail: usami@eei.eng.osaka-u.ac.jp

【背景】 GaN 縦型パワーデバイス実現にあたりイオン注入による局所的な p 型伝導性制御技術が重要である。GaN においてイオン注入による p 型化を実現するには結晶回復アニール時の窒素脱離を抑制する必要がある。1 GPa もの超高压環境下でアニールする超高压アニール (UHPA) によって窒素脱離抑制と p 型化が実証されている^[1]。しかしながら、超高压・高温に対応した大型加圧容器は技術的ハードルが高く大口径化に依然として課題が残る。本発表では GaN の気相成長法である酸化物気相成長 (OVPE) 法を応用した大気圧下で行える新規活性化手法を提案する。

【実験】 提案するプロセスフローを図 1 に示す。①イオン注入した GaN 上に OVPE 法で GaN 層を成膜しながらイオン注入層の活性化を行う。その後、②成膜された OVPE 層のみを剥離する。OVPE 法は Ga₂O ガスと NH₃ の高い反応性によって 1200~1300°C の活性化温度帯においても GaN を成膜できる^[2]。すなわち、原理的には成長駆動力によって窒素脱離を抑制可能と考えられる。また、OVPE 法は高酸素ドーピングによって超低抵抗となる特徴があり、電気化学エッチングによって選択性が得られると考えられる。本発表ではその原理検証を行った。試料として 30 keV, 5.8×13 cm⁻² で N→Mg の順で共注入した GaN を用いた。その試料上に OVPE 法を用いて 1200°C, 1 時間の GaN 成膜を行った。昇温中の窒素脱離を抑制するため、通常よりも低温の 900°C から成膜を開始した。成膜後、1 M の KOH 水溶液に OVPE 層付き試料を浸漬し、サンプル側を陽極として電気分解を行った。剥離後に AFM で表面平坦性を確認し、低温 PL を取得した。

【結果・考察】 試料上に成膜した OVPE 層は多結晶化しており、膜厚は 40 μm であった。この多結晶 OVPE 層を電気化学エッチングしたところ、部分的に残留するものの大部分の OVPE 層を選択的に除去することに成功した。しかしながら、剥離後表面にクラックが確認された。クラックの原因は多結晶 OVPE 層からの応力によるものと思われる。クラックを避けて剥離後表面を AFM で評価したところ RMS 値は 0.4 nm であり、表面荒れは確認されなかった。最後に OVPE 層を除去し、露出した試料表面の低温 PL スペクトルを図 2 に示す。3.28 eV に Mg 起因のピークが明瞭に観察され、Mg が活性化していることが確認できた。以上より、課題はあるものの本提案手法は大口径ウェハに対応する Mg イオン注入 GaN の活性化手法になり得ると考えられる。

【参考文献】 [1] H. Sakurai *et al.*, Appl. Phys. Lett., **115**, 142104 (2019).

[2] A. Shimizu *et al.*, Appl. Phys. Express **15**, 035503 (2022).

【謝辞】 本研究の一部は環境省「革新的な省 CO₂ 実現のための部材 (GaN) や素材 (CNF) の社会実装・普及展開加速化事業」の委託を受けて行われた。

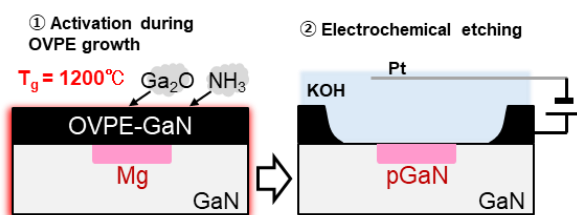


Fig. 1. Proposed activation process flow using OVPE.

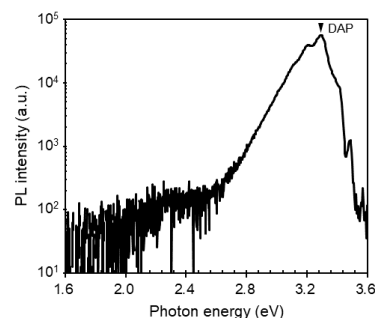


Fig. 2. Low temperature PL spectrum measured at 40K.

p 型 GaN 表面に発生する電荷についての検討

Investigation of Charge Generated at Surface of p-type GaN

北大量集センター¹ ○(M2) 焦 一寧¹, (M1) 高橋 尚伸¹, (M1) 島崎 喬大¹,

佐藤 威友¹, 赤澤 正道¹

RCIQE, Hokkaido Univ.¹

°Y. Jiao¹, M. Takahashi¹, T. Shimazaki¹, T. Sato¹, and M. Akazawa¹

E-mail: jiaoyining@rciqe.hokudai.ac.jp

【はじめに】窒化ガリウム(GaN)は、その高い破壊電界、高い電子飽和速度、高い電子移動度から、次世代の高出力デバイスの材料として期待されている。MOSFET は GaN の利点を十分に引き出すことができる。高性能化の GaN MOSFET デバイスが報告されているが、p 型 GaN (p-GaN)表面近傍の欠陥を制御することにより、さらに電子移動度を高める可能性がある。本研究では、800 度キャップレスアニールまたは SiO₂ キャップアニールの後、p-GaN 層上に MOS ダイオードを作製し、電気的特性と作製プロセスの各段階で行った X 線光電子分光法(XPS)結果をもとに、表面近傍欠陥による電荷について調べた結果を報告する。

【実験方法】MOVPE 法により、n-GaN 自立基板上に高濃度 pn 接合を介して p-GaN エピタキシャル層($N_A = 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)を成長した。脱水素熱処理による Mg の活性化は、窒素雰囲気中 800°Cにおけるキャップレスアニールまたは SiO₂ キャップアニールを行った。キャップアニールにおける SiO₂ キャップ層は RF スパッタにより形成した。アニール後には、両方の試料とも HF:H₂O=1:1 によりキャップ層あるいは表面酸化膜を除去し、ALD で Al₂O₃ 層を成膜、Ti/Au 電極を形成するとともに、裏面に Ti/Au オーミックコンタクトを形成し、MOS ダイオードを作製した。さらに、大気中 300 度 3 時間の熱処理 (PMA) を行った。キャップアニール後の XPS においては、BHF によるウェットエッチングにより SiO₂ を 3nm の極薄層として評価を行った。

【結果と議論】XPS による各段階での表面フェルミ準位(E_{FS})位置の評価結果を Fig. 1 に示す。脱水素アニール前の as-grown の段階においては、 E_{FS} は $E_C - 0.9 \text{ eV}$ にあり、キャップレスアニールにより電荷中性点 E_{CNL} ($E_C - 1.1 \text{ eV}$) に近付いた。両方とも、誤差の範囲を考えると、表面の乱れにより発生した表面準位によるピンニングと考えることができる。しかし、SiO₂ キャップアニール直後には E_{FS} は大幅に E_C 側へ移動した。これは、p-GaN 表面近傍欠陥に起因した E_C 付近ドナー型準位の存在を示唆するものと考えられる。一方、Fig. 2 に示すように、キャップアニール後に作製した MOS 構造の $C-V$ 特性は正の固定電荷の存在を示し、導出された禁制帯内準位密度(D_T)分布は $E_V + 0.4 \text{ eV}$ 付近で急激に増加した。報告[1]によると、窒素空孔(V_N)欠陥は、 $E_V + 0.5 \text{ eV}$ および $E_C - 0.2 \text{ eV}$ 付近にドナー型欠陥準位を生じる。p-GaN 表面では V_N 欠陥が正電荷を生じている可能性が高い。

【謝辞】本研究は文部科学省「革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発」事業 JPJ009777 の委託および科研費 JP24K22934、JP23K26131 の援助を受けました。MOVPE 成長を頂いた、豊田中央研究所の成田哲生氏に感謝いたします。

[1] J. L. Lyons and C. G. Van de Walle, npj Computational Materials (2017) 12.

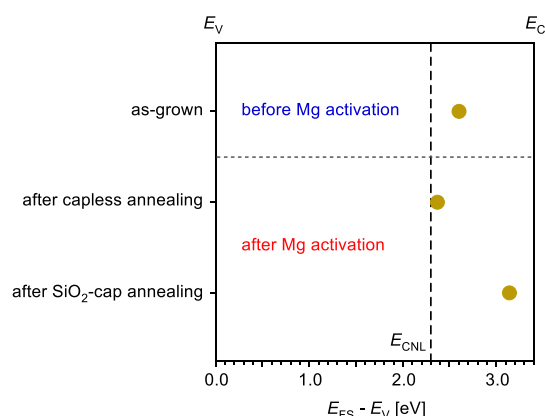


Fig.1 Surface Fermi level position investigated by XPS at each process step.

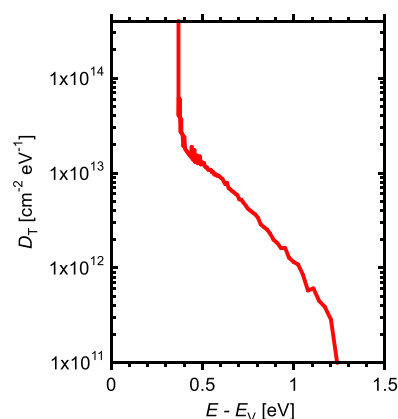


Fig.2 D_T distribution of MOS diode fabricated after SiO₂ cap annealing.

分布型分極ドーピングによる AlN 系縦型 p-n ダイオードの作製

Fabrication of AlN-Based Vertical p-n Diodes with Distributed Polarization Doping

名大院工¹, 旭化成², 名大 IMaSS³, 名大 D センター⁴, 名大 IAR⁵○隈部 岳瑠¹, 吉川 陽^{2,3}, 川崎 晟也¹, 久志本 真希¹, 本田 善央^{3,4,5}, 新井 学³, 須田 淳^{1,3}, 天野 浩^{3,4,5}{Grad. Sch. Eng.¹, IMaSS³, D Center⁴, IAR⁵} Nagoya Univ., Asahi Kasei Corp.²○Takeru Kumabe¹, Akira Yoshikawa^{2,3}, Seiya Kawasaki¹, Maki Kushimoto¹,Yoshio Honda^{3,4,5}, Manabu Arai³, Jun Suda^{1,3}, and Hiroshi Amano^{3,4,5}

E-mail: kumabe@nagoya-u.jp

【背景・目的】 AlN および高 Al 組成 AlGa_{0.7}N は極めて大きなバンドギャップと絶縁破壊電界から次世代パワーデバイス材料として期待されている。 p-n 接合は半導体デバイスの基本構成要素であるが、 AlN 系材料では良好な電気特性を示す p-n ダイオードは実現されていない。 この原因としてドナーおよびアクセプター不純物のイオン化エネルギーが大きく、室温での伝導性制御が困難なことが挙げられる[1]。 そこで、本研究では不純物ドーピングに代わり分布型分極ドーピング (Distributed Polarization on Doping: DPD)[2]を用いて p-n 接合を作製し、良好な電気特性を示す AlN 系 p-n ダイオードを実現したので報告する[3,4]。

【実験方法】 Fig. 1 に作製した AlN 系縦型 p-n ダイオードの断面構造図を示す。 デバイス層構造は MOVPE 法により半絶縁性 AlN 基板に成長し、 p-n 接合部分は意図的な不純物ドーピングを伴わない DPD により形成した。 DPD は Al 組成を 70% から 95% まで線形傾斜した AlGa_{0.7}N により実現し、 p⁺領域及び n 領域の空間電荷密度がそれぞれ 2×10^{18} 及び $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 程度となるよう膜厚(組成傾斜度)を設計した。 ドライエッチングにより垂直メサ形成と n⁺-Al_{0.7}Ga_{0.3}N:Si コンタクト層の露出を行い、メサ周辺部(n 側)に V/Al/Ni/Au オーミック電極、メサ上部(p 側)に Ni/Au オーミック電極を形成、表面を SiO₂ とポリイミドにより保護することで縦型ダイオードを作製した。

【実験結果と考察】 Fig. 2 に作製したダイオードの順方向電流電圧特性と理想係数(n)を示す。 デバイスは整流作用を示し、その伝導機構は広い温度域(RT–300°C)で再結合電流($n=2$)により説明できた。 加えて、電流注入による深紫外発光も観測された。 これらは作製したデバイスが p-n ダイオードであることを支持している。 Fig. 3 に逆方向電流電圧特性を示す。 作製したダイオードは 283 V で破壊した。 容量電圧特性や Al 組成分布の実測値から求めた p⁺層及び n 層の空間電荷密度を元に計算した破壊電界は 7.3 MV/cm であった。 これは同ドーピング濃度における GaN の絶縁破壊電界(3.7 MV/cm)[4]の約 2 倍である。 このように、 DPD を用いることで高 Al 組成 AlGa_{0.7}N (Al 組成 > 70%) でも良好な電気特性を示す p-n ダイオードを作製可能であることを実証した。 当日は、低オン抵抗化や高耐圧化に向けた、デバイス・メサ構造の検討結果についても報告する。

【参考文献】 [1] Y. Taniyasu *et al.*, Nature **441**, 325–328 (2006). [2] D. Jena *et al.*, APL **81**, 4395–4397 (2002). [3] T. Kumabe *et al.*, T-ED **71**(5), 3396–3402 (2024). [4] 隈部 他, 第 71 回春応物, 23a-21C-3, 東京 (2024). [5] T. Maeda *et al.*, JAP **129**, 185702 (2021).

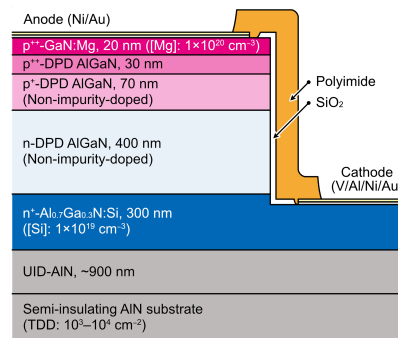


Fig. 1: Schematic cross-sectional view of a fabricated p-n diode. (Ref. [4])

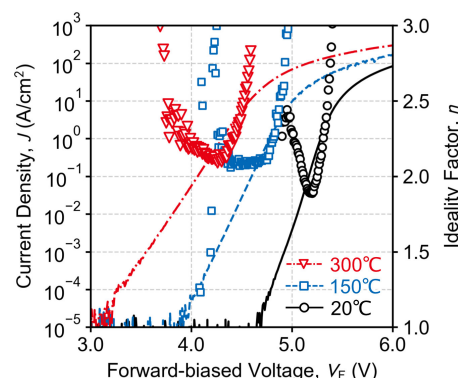


Fig. 2: Forward-biased J - V characteristics of a fabricated diode. The open markers indicate ideality factor. (Ref. [4])

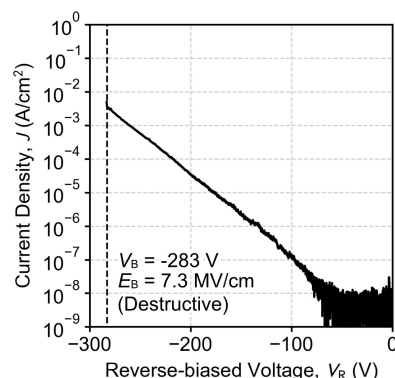


Fig. 3: Reverse-biased J - V characteristics of a fabricated diode. (Ref. [4])

Si ドープ AlN ショットキーバリアダイオードにおける順方向リーク電流の解析 Analysis of Forward Current Component in Si-doped AlN Schottky Barrier Diodes

佐々木一晴¹, 廣木正伸², 熊倉一英², 平間一行², 谷保芳孝², 中野義昭¹, 前田拓也¹

I. Sasaki¹, M. Hiroki², K. Kumakura², K. Hirama², Y. Taniyasu², Y. Nakano¹, T. Maeda¹

University of Tokyo¹, NTT Basic Research Laboratory²

E-mail: isasaki@wbgu.u-tokyo.ac.jp

窒化アルミニウム (AlN) は非常に大きいバンドギャップ (~6.1 eV) と高い絶縁破壊電界 (~12 MV/cm) により、高耐圧で高温動作可能な電子デバイス材料として期待されている。しかし、高品質な結晶を成長する技術が確立されておらず、結晶欠陥が依然として多いために、詳細な物性理解が不十分であるのが現状である。AlN ショットキーバリアダイオード (SBD) に関しては、現在最も良い理想因子 (n 値) の報告は 1.5 であり、理想的な値 ($n=1.0$) から大きく離れている [1, 2]。そこで、本研究では、AlN SBD の電流輸送機構を詳細に解析し、 n 値と障壁高さのばらつきについて系統的に調べたので報告する。

半絶縁性 SiC 基板上に有機金属気相成長法 (MOVPE) によってアンダードープ AlN、Si ドープ AlN、Si ドープ組成傾斜 $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ 層 ($x=1.0 \rightarrow 0.2$) を成長した。AlN 層の貫通転移密度は 10^9 cm^{-2} 程度である。ドライエッチングにより傾斜 AlGa_{1-x}N 層を除去して Si ドープ AlN 層を露出させ、傾斜 AlGa_{1-x}N 層にオーミック電極、Si ドープ AlN 上にショットキー電極として Ni/Au 電極を蒸着した。Si ドープ AlN の Si 密度は $1.3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ である。ショットキー電極直径 200 μm 、400 μm 、800 μm の 3 水準、各 24 電極を用意し、それぞれに対して順方向電流-電圧 (I - V) 測定および容量-電圧 (C - V) 測定を行った。順方向 I - V 測定の結果、直径 200 μm において、理想因子 1.35 (これまで報告されている中で最も 1 に近い値) を示す素子を確認した。これは、電流輸送機構が概ね熱電子放出 (TE) モデルに従うことを示唆している。TE モデルに基づいた解析を行ったところ、障壁高さは 2.58 eV となった。同様に、 C - V 測定の結果からも障壁高さを求めると、3.5 eV 程度という値が得られた。 I - V から得られた値が C - V から得られた値よりも小さい理由は、熱電子放出による成分以上に電流が流れ、飽和電流密度が過大評価されたためと考えられる。

上述のようなほぼ理想的な特性を示す素子のほかに、障壁高さの局所低下を反映したショルダーライク特性 [3] を示す素子も散見された。顕著なリーク成分が存在しない素子を良品と定義し、各直径水準に対し良品率 Y を求めたところ、200 μm で $Y=0.21$ 、400 μm で $Y=0.04$ 、800 μm で $Y=0$ となった。障壁高さの局所低下を生じる欠陥密度を D 、面積を A とすると、 $Y=\exp(-DA)$ と表せ、これを用いると $D=4 \times 10^3 \text{ cm}^{-2}$ 程度であると見積もることができた。これは、AlN 層の貫通転移密度 10^9 cm^{-2} と比較すると非常に小さい値であり、全ての転位が障壁高さの局所低下とリーク電流を引き起こすのではなく、他の要因が存在する可能性が示唆された。

【参考文献】 [1] T. Maeda *et al.*, *Applied Physics Express* **15**, 061007 (2022). [2] C. E. Quiñones *et al.*, *Applied Physics Letters* **123**, 17 (2023). [3] D. Defives *et al.*, *IEEE Transactions on Electron Devices* **46**, 449 (1999).

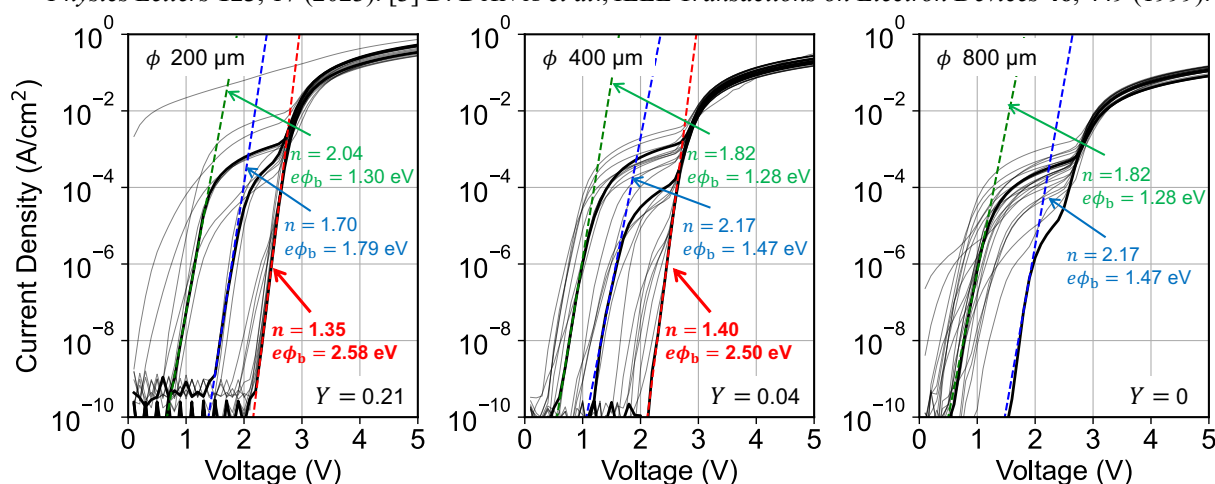


Fig. 1. Forward I - V characteristics of AlN SBDs with the Schottky electrode diameters of 200 μm , 400 μm , and 800 μm . Shoulder-like characteristics are observed, which indicates the barrier height inhomogeneity.

AlN MESFET の高温特性評価

Characterization of high-temperature properties of AlN MESFETs

NTT 物性研 ○廣木正伸、平間一行、熊倉一英、谷保芳孝

NTT Basic Research Labs., ○Masanobu Hiroki, Kazuyuki Hiram, Kazuhide Kumakura and

Yoshitaka Taniyasu

E-mail: masanobu.hiroki@ntt.com

AlN は高い絶縁破壊電界を有しており、パワーデバイス応用に有望である。また、バンドギャップエネルギーが 6 eV と大きい真性キャリア濃度は高温でも低く、高温応用にも適している。我々は、Si ドープ n 型 AlN を用いた MESFET の動作に成功し、また、500°C の高温でも優れた特性を有することを報告した[1]。今回、ステージ温度 1000°C に昇温可能なプローバーを用いて AlN MESFET の高温特性を評価したので報告する。

AlN MESFET の断面構造を Fig. 1 に示す。半絶縁 SiC 基板上にアンドープ AlN バッファ層、Si ドープ n 型 AlN チャンネル層を有している。Si ドープ濃度は $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ である。n 型 AlN チャンネル層とソース、ドレイン電極の間には組成傾斜 AlGaIn コンタクト層を形成している。ソース、ドレイン電極として 800°C でアニールした V/Al/Pt/Au、ゲート電極として Ni/Au を用いた。ゲート長は 2 μm 、ゲート幅は 200 μm 、ソース-ドレイン間隔は 6 μm である。

室温からステージ温度 1000°C での伝達特性を Fig. 2 に示す。なお、温度はプローバーステージの裏面の熱電対で測定しているため、デバイス表面の温度はこれと異なることに留意する必要がある。室温から 500°C まで温度上昇とともにドレイン電流 (I_d) は 0.45 mA/mm から 48 mA/mm に増加した。これは Si ドナーの活性化による電子濃度の増加によると考えられる。さらに温度を上げると、ドレイン電流は緩やかに減少し 1000°C において I_d は 30 mA/mm であった。この減少はフォノン散乱の増加による移動度低下のためと考えられる。電流オフ状態でのドレインリーク電流は室温から 1000°C への温度上昇に伴い 1×10^{-12} から 1×10^{-4} A/mm に増加したが、ステージ温度 1000°C においてもオンオフ比 10^2 が得られた。オフ状態でのゲート電流 (I_g) も増加したが、 I_d の 1/10 程度であることから、ドレインリーク電流の原因としては AlN バッファ層中のリークが支配的であると考えられる。

次に AlN MESFET の耐熱性について調べた。1000°C への加熱によって、デバイス特性は非可逆的に変化した。Fig. 3 にゲートリーク特性を示す。加熱前に室温の逆方向ゲートリーク電流は 10^{-11} A/mm であったが、加熱後 10^{-8} A/mm に上昇した。順方向リーク電流も低電圧領域でリーキーな特性を示した。これらの結果は高温加熱により、ゲート電極のショットキー特性が劣化したことを示している。耐熱性の良いゲート電極の開発が、AlN MESFET の高温応用に必須である。

[1] M. Hiroki et al., IEEE Electron Device Lett. 43, 350 (2022).

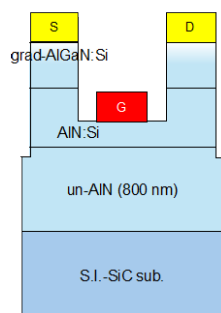


Fig. 1. Cross-sectional schematic of AlN MESFETs.

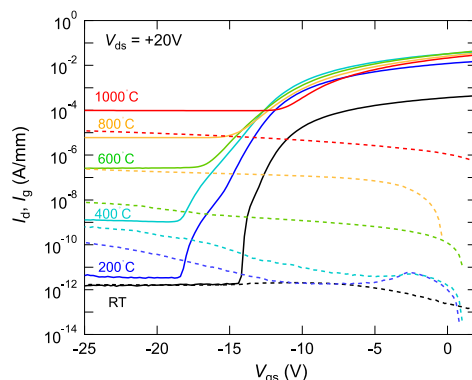


Fig. 2. Transfer characteristics of AlN MESFET from RT to 1000°C. Solid and dashed lines correspond to I_d and I_g , respectively.

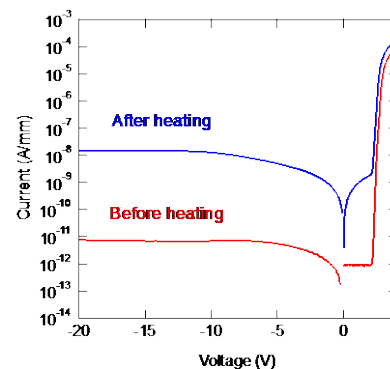


Fig. 3. Forward and reverse gate leakage characteristics of AlN MESFET before and after heating at RT.

Al-rich AlGaN マルチチャネル Fin 構造の作製と評価

Fabrication and characterization of Al-rich AlGaN multichannel Fin-structure

東京大学生産技術研究所 °小坂鷹生, 上野耕平, 藤岡洋

Institute of Industrial Science, The University of Tokyo

°Takao Kozaka, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka

E-mail: kozaka@iis.u-tokyo.ac.jp

【背景】近年のデジタル通信の高周波化・大容量化に伴って、トランジスタの更なる性能向上が求められており、次世代半導体材料として Ultra-wide band-gap (UWBG) 半導体の Al-rich AlGaN が注目されている。Al-rich AlGaN は、 ~ 17 MV/cm の高い絶縁破壊電界に加えて、 ~ 50 THz V の Johnson 性能指数 $= (\text{絶縁破壊電界} \times \text{飽和速度} / 2\pi)^2$ を示す[1]。さらに、Al-rich AlGaN は AlGaN/GaN 構造と同様、AlN/AlGaN ヘテロ界面に誘起される良質な電子伝導層の 2 次元電子ガス (2DEG) を多層化することができ、破壊電圧とオン抵抗のトレードオフを層数に比例して改善し、デバイスの出力を向上させることができる[2]。しかし、Al-rich AlGaN マルチチャネルトランジスタの実現には、Fin 型のチャンネルにサイドゲート構造を形成する必要があるため、また、2DEG への良好なオーミックコンタクトを形成することが困難であるため、未だその実現可能性について十分検討されていない。本研究では、スパッタ法により作製した Al-rich AlGaN マルチチャネル構造に対して、高濃度縮退 n 型 GaN(d-GaN)再成長技術によって低抵抗のオーミックコンタクトを形成し、Al-rich AlGaN マルチチャネル Fin 型構造の構造特性と電気特性を評価した。

【実験方法】結晶成長実験はパルススパッタ堆積(PSD)装置を用いて実施した。基板には+c-AlN/sapphire テンプレートを用い、初期検討として AlN/AlGaN ダブルチャネル構造を作製した。続いて、Ni/SiO₂ マスクを用いた ICP-RIE ドライエッチングにより Fin 構造を形成した後、同じくスパッタ法を用いた SiO₂ マスクによる d-GaN 選択再成長から 2DEG へのオーミック接触を形成した。次に ICP-RIE ドライエッチングにより素子分離した後、側壁にゲート電極として Ni/Au を EB 蒸着で堆積させた。最後に d-GaN 上のオーミック電極として Ti/Al/Ti/Au を EB 蒸着で堆積した。

【結果と考察】図 1(a)に、Al-rich AlGaN ダブルチャネル構造の XRD $2\theta/\omega$ 測定の結果を示す。観測された明瞭なフリンジパターンは AlN 50 nm、Al 組成 65% の AlGaN 135 nm の繰り返し構造で精度よくフィッティングされた。さらに、図 1(b)のダブルチャネル構造の逆格子マッピングから、AlN に対して AlGaN がコヒーレントに成長していることが確認でき、ダブルチャネル構造の結晶品質が高いことを示している。ここで得られたダブルチャネル構造から、図 1(c)に示すように Fin 型構造のトランジスタを形成した。チャンネル幅は図 1(d)に示すように 600 nm で、ソースドレイン間の I-V 特性を測定したところ、オーミック特性が確認された。

【謝辞】本研究の一部は JST A-STEP(JPMJTR201D)、科研費 (JP23K26557) の助成を受けて行われた。

【参考文献】[1] A. G. Baca *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. A **38**, 020803 (2020). [2] Y. Zhang *et al.*, Nat. Electron. **5**, 723 (2022).

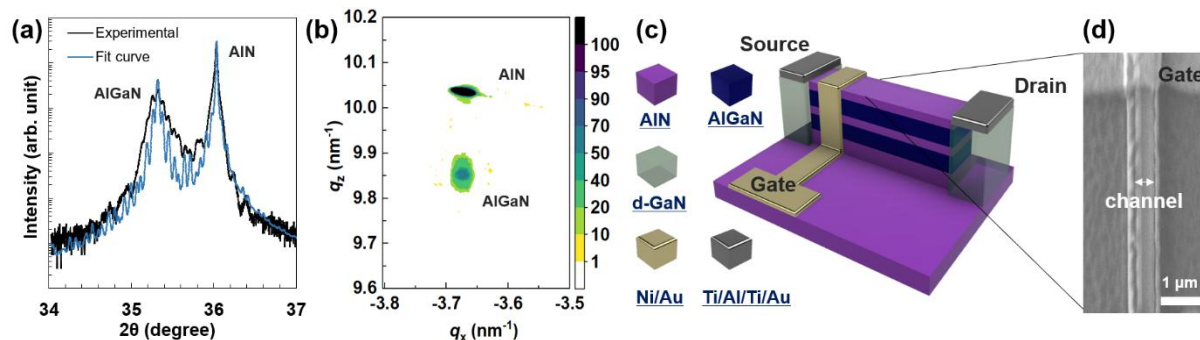


Fig. 1 (a) Symmetrical X-ray diffraction (XRD) $2\theta/\omega$ measurements and (b) reciprocal space mapping near 10-15 diffractions of the AlN/Al_{0.65}Ga_{0.35}N 2-channel structure. (c) The proposed AlN/AlGaN multichannel FinFET in a 3D schematic and (d) SEM image of actual fabricated Fin-structure.

MOVPE 法で成膜した AlN 基板上の格子整合 AlN/GaN HEMT の動作実証

Demonstration of Pseudomorphic AlN/GaN HEMT Operation on AlN Substrate Using MOVPE Method

旭化成¹, 名大院工², 名大 IMASS³ ○李太起¹, 吉川陽^{1,3}, 隈部岳瑠², 杉山聖¹, 新井学³, 須田淳^{2,3}, 天野浩^{2,3}

¹Asahi Kasei Corp., ²Nagoya Univ., ³IMaSS, ○TaeGi Lee¹, Akira Yoshikawa^{1,3}, Takeru Kumabe²,
Sho Sugiyama¹, Manabu Arai³, Jun Suda^{2,3}, and Hiroshi Amano^{2,3}

E-mail: lee.tb@om.asahi-kasei.co.jp

【緒言】近年、次世代の電子デバイス材料として 6.0 eV のワイドバンドギャップと 340 W/mK の高い熱伝導率を有する AlN に注目が集まっている。過去には緩和系 AlGaIn/GaN on AlN が報告されてきたが^[1], 耐圧の観点から格子整合系 AlN/GaN on AlN への期待が大きい。これまでコーネル大学のみが MBE を用いて格子整合系 AlN/GaN の成膜と HEMT 特性の実証に成功してきた^[2]。一方で将来的な大口径化および量産を鑑みると MOVPE 法による実現が望まれる。我々のグループでは格子整合系の GaN on AlN を MOVPE 法により実現することに成功した^[3]。本研究では MOVPE 法により作製した AlN/GaN on AlN において、HEMT の動作実証に成功したので報告する。

【実験】MOVPE 法によって AlN 単結晶上に成長された格子整合系 AlN-9 nm/GaN-13 nm ウェハを用いて HEMT デバイスを作製した。Hall 測定から求めた 2DEG の特性は電子移動度 300 cm²/Vs, シートキャリア濃度 1.1×10^{13} cm⁻², シート抵抗 2000 Ω/sq であった。ゲート電極には Ni/Au, ソース・ドレイン電極には V/Al/Ni/Au を使い, $L_G = 5 \mu\text{m}$, $L_{GD} = 20 \mu\text{m}$, $L_{SG} = 3 \mu\text{m}$ を採用した。

【結果】HEMT の出力特性および伝達特性を図 1 (a), (b) に示す。出力特性においては, $V_{DS} = 5 \text{ V}$ 以下の領域でショットキー性がわずかに見られるものの, 明瞭なピンチオフが観測された。伝達特性ではリーク電流を十分に抑制できており, ON/OFF 比は 10^7 を得た。伝達特性から得られた相互コンダクタンス g_m は 0.025 S/mm と算出された。これらの結果から, MOVPE 法を用いた場合においても格子整合系 AlN/GaN on AlN の HEMT デバイスが動作することを実証した。また, 絶縁破壊電圧を測定したところ, 耐圧改善のための工夫は行っていないにも関わらず 2.3 kV (1.15 MV/cm) と優れた値を示した。この結果は, AlN/GaN on AlN が AlN 単結晶基板の特長を活かしたデバイスであることを示唆している。すなわち, AlN が電子デバイスの材料として高いポテンシャルを持つことを示すことができたと言えるだろう。

[1] S. Ozaki *et al.*, Appl. Phys. Express **14**, 041004 (2021).

[2] A. Hickman *et al.*, IEEE Electron Device Lett. **40**, 1293 (2019).

[3] 吉川 陽 他 第 71 回 応用物理学会春季学術講演会 25a-P03-5 2024 年 3 月

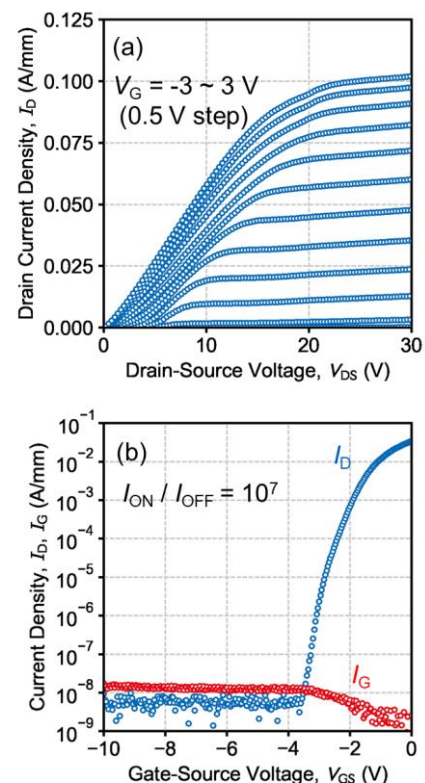


Figure 1. (a) Output and (b) Transfer characteristics of the HEMT.

高 AlN モル分率 AlGaIn/GaN デュアルゲート HEMT の電気的特性

Electrical Characteristics of a High AlN Mole Fraction AlGaIn/GaN Dual-Gate HEMT

名大院工¹, 名大未来研², 熊本大³

○安藤 裕二^{1,2}, 高橋 英匡¹, 牧迫 隆太郎¹, 分島 彰男³, 須田 淳^{1,2}

Nagoya Univ.¹, Nagoya Univ. IMASS², Kumamoto Univ.³

°Yuji Ando^{1,2}, Hidemasa Takahashi¹, Ryutaro Makisako¹, Akio Wakejima³, Jun Suda^{1,2}

E-mail: y-ando@nuee.nagoya-u.ac.jp

Beyond 5G/6G 通信システムで利用される 100–300 GHz のテラヘルツ帯電力増幅器にはゲート長を微細化しても高電圧動作が期待できる GaN HEMT の性能優位性が見込まれる。一般に、増幅用デバイスの最大発振周波数(f_{\max})は動作周波数の数倍高いことが求められるが、GaN HEMT の f_{\max} は研究開発品でも 600 GHz 程度以下に限られる。我々は GaN HEMT のテラヘルツ帯での利得性能を向上するため、デュアルゲート(DG)構造を検討している[1]。今回は、AlGaIn/GaN DG-HEMT の更なる高性能化を目指して AlGaIn バリア層の高 AlN モル分率化を図った。

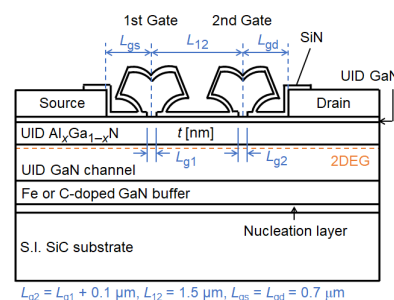
デバイス試作には 4 インチ半絶縁性 SiC 基板上に MOVPE 法により AlGaIn/GaN ヘテロ構造を成長したエピタキシャル基板を用いた。エピ構造としては AlGaIn バリア層の AlN モル分率 x が 0.22、層厚 t が 17.5 nm の従来構造 A と $x = 0.34$, $t = 11.5$ nm の高 AlN モル分率構造 B を用いた(図 1)。最初に、構造 A と構造 B のシングルゲート(SG)素子($L_g = 0.19 \mu\text{m}$)の電気的特性を比較した。構造 B では構造 A と比べて最大ドレイン電流 I_{\max} と最大相互コンダクタンス g_{\max} が向上し、高 AlN モル分率化による電流駆動能力向上を確認した(表 I)。パルス I - V 測定(ストレス条件: $V_{dq} = 15$ V, $V_{gq} = -5$ V, パルス幅: 10 μs , パルス周期: 10 ms)の結果、非ストレス時に対するストレス時の I_{\max} 低下率で定義した電流コラプス量も構造 A の 8–30%に対して構造 B では 5–9%と改善することが示された(図 2)。次に、構造 B を用いて作製した DG 素子($L_{g1} = 75$ nm)の電気的特性を評価した。DG 素子の I_{\max} は第 2 ゲート電圧 V_{gs2} の増加により向上した(図 3)。 V_{gs2} が 2 V 以上では I_{\max} が飽和傾向を示し、ゲートリーク電流も増大したことから、 $V_{gs2} = 2$ V に設定して S パラメータ測定(0.4–26.5 GHz)を行った。 $|h_{21}|^2$ の外挿により求めた電流利得遮断周波数(f_T)は 74 GHz、Mason's U の外挿から求めた f_{\max} は 248 GHz であった(図 4)。以上の結果は、AlGaIn バリア層の高 AlN モル分率化が AlGaIn/GaN DG-HEMT の性能向上に有効であることを示している。

エピ基板をご提供頂きました住友化学の乙木博士(現名古屋大学)、堀切博士に感謝します。本研究は NICT「Beyond 5G 研究開発促進事業」の助成を受けたものである。

[1]安藤他,2024 年応用物理学会春季学術講演会 24p-52A-15.

Table I. Typical DC characteristics of fabricated SG-HEMTs.

Device	x	t (nm)	V_{th} (V)	I_{\max} (A/mm)	g_{\max} (S/mm)
A	0.22	17.5	-2.1	1.1	0.37
B	0.34	11.5	-2.4	1.4	0.45



$$L_{g2} = L_{g1} + 0.1 \mu\text{m}, L_{12} = 1.5 \mu\text{m}, L_{gs} = L_{gd} = 0.7 \mu\text{m}$$

Fig. 1. Schematic of the DG-HEMT structure.

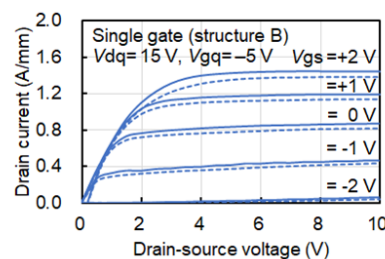


Fig. 2. DC (solid) and pulsed (dotted) I - V characteristics of an SG-HEMT.

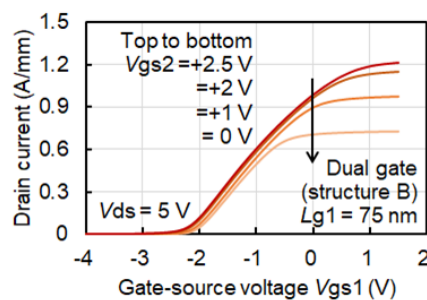


Fig. 3. Transfer characteristics of a DG-HEMT with $L_{g1} = 75$ nm.

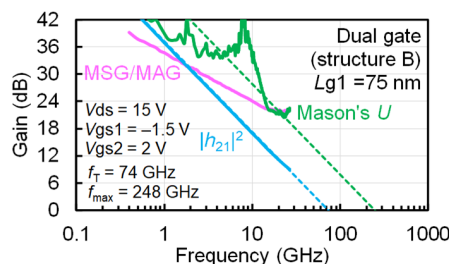


Fig. 4. Small-signal gain vs. frequency for a DG-HEMT with $L_{g1} = 75$ nm.

GaN/AlGaIn/GaN ダブルヘテロ構造の縦型 PND 構造における アバランシェ降伏の確認

Confirmation of avalanche breakdown in a vertical PND structure with GaN/AlGaIn/GaN double heterostructure

名大院工¹, 名大 IMASS², 名大 D センター³, 名大高等研究院⁴

○(D1)小久保 瑛斗¹, 渡邊 浩崇², 出来 真斗³, 田中 敦之², 新田 州吾²,
本田 善央^{2,3,4}, 天野 浩^{2,3,4}

Nagoya Univ.¹, IMASS Nagoya Univ.², D center Nagoya Univ.³, IAR Nagoya Univ.⁴
Eito Kokubo¹, Hirotaka Watanabe², Manato Deki³, Atsushi Tanaka², Shugo Nitta²,
Yoshio Honda^{2,3,4}, Hiroshi Amano^{2,3,4}

E-mail: kokubo.eito.k3@s.mail.nagoya-u.ac.jp

【背景】GaN/AlGaIn/GaN ダブルヘテロ構造の各界面付近には2次元電子ガスと2次元正孔ガスが発生することを活かし、PSJFET[1]などの高耐圧デバイスに利用されている。PSJ FET の耐圧を向上させるためには、電界緩和構造であるダブルヘテロ構造の破壊特性を知ることが重要である。本研究では PSJ FET の絶縁破壊特性を明らかにするための第一歩として、GaN/AlGaIn/GaN ダブルヘテロ構造を備えた縦型ダイオードを作製し、その電気特性について調べたので報告する。

【実験内容】GaN/AlGaIn/GaN ダブルヘテロ構造を備えた pn ダイオードの構造を Fig. 1 に示す。デバイス構造は MOVPE 法を用いて n 型 GaN 基板上に成長した。ICP-RIE により垂直メサ構造の形成を行い、メサ上部に p 型 GaN へのオーミック電極として Ni/Au、基板裏面に n 型 GaN へのオーミック電極として Al を蒸着し、表面を Al₂O₃ により保護することでデバイス作製を完了した。

【結果】Fig. 2 にダイオードの逆方向電流電圧特性を繰り返し測定した結果を示す。ダイオードの絶縁破壊電圧は約 170 V で変化せず、非破壊降伏が得られた。また、エミッション顕微鏡での観察を行った結果、メサ内部で得られた均一な発光から、デバイス内部で電界が均一にかかっていることが確認された。絶縁破壊電圧の温度依存性を Fig. 3 に示す。絶縁破壊電圧は温度に対して線形に上昇しており、その温度係数は $\alpha=2.6 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ であった。これは不純物ドーピングを用いた GaN PND ($\alpha=6.0 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$)[2]と同程度の値であり、作製したダイオードの絶縁破壊機構がアバランシェ降伏であることが示された。これらの結果は、PSJ FET の耐圧の改善や非破壊降伏の実現につながる。

【参考文献】[1] H. Kawai, *et al.*, *Phys. Status Solidi A* **214**, No. 8, 1600834 (2017) [2] I. C. Kizilyalli, *et al.*, *IEEE Trans. Electron Devices* **62**, 414-422(2015)

【謝辞】本研究は、国立研究開発法人科学技術振興機構 (JST) 先端国際共同研究推進事業 (ASPIRE), JPMJAP2311 及び科研費 JP22H00213 の支援を受けたものである。

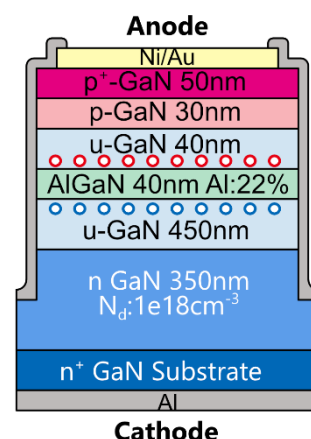


Fig. 1 Device structure of PSJ PND

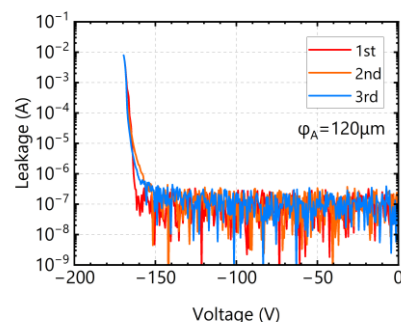


Fig. 2 Repeat reverse I-V characteristics

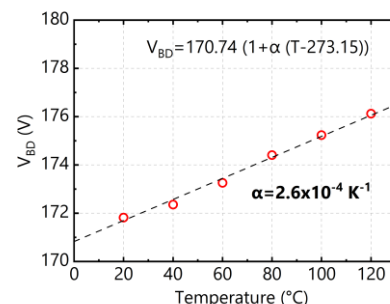


Fig. 3 Temperature dependence of breakdown voltage

AlGaN/GaN ヘテロ界面でのキャリア輸送特性と欠陥分布

Correlation between the carrier transport and defect distribution of AlGaN/GaN heterostructure

物材機構¹, 中部大工² ○角谷正友¹, 今中康貴¹, 中野由崇², 竹端寛治¹

NIMS¹, Chubu Univ.² OM. Sumiya¹, Y. Imanaka¹, Y. Nakano², and K. Takehana¹

E-mail: SUMIYA.Masatomo@nims.go.jp

【はじめに】我々は GaN チャンネル層が 0.4 μm と薄くても HEMT として十分に動作する AlGaN/GaN ヘテロ構造を作製した[1]。HEMT の高周波化・高出力化に向けて、ヘテロ界面に形成された 2DEG のキャリア輸送特性を理解することは重要である。今回、AlGaN/GaN ヘテロ界面に極薄 AlN 層を挿入したり、AlGaN 障壁層 Al 組成を制御したりしたヘテロ構造の 2DEG キャリア輸送特性を低温強磁場測定によって調べた。また、同一試料を定常光容量分光法 (Steady-state photocapacitance spectroscopy: SSPC) で評価して、2DEG を含む GaN チャンネル層内でのギャップ内欠陥準位と輸送特性との相関を検討したので報告する。

【実験】AlGaN/GaN ヘテロ構造はサファイア基板上 AlN テンプレート上に MOCVD で成長した。GaN チャンネル層を1気圧で成長した後に 200 Torr に減圧して AlGaN 障壁層を同じ基板温度で成長した。AlN モル分率は供給する TMA の流量を制御することで 4~25 % で変化させた。AlN 層を AlGaN と GaN の間に挿入する場合には AlGaN 障壁層を成長する直前に TMA のみを約 7 秒間先行して供給した。AlGaN/GaN ヘテロ構造試料の(0002)近辺の XRD 回折パターンをシミュレーションすることで AlGaN 障壁層の AlN モル分率や膜厚、および AlN 層厚を求めた。約 $2 \times 5 \text{ mm}^2$ に切断した試料にホール測定用電極を形成して 1.8 K 中の 15 T の強磁場中で磁気抵抗(R_{xx})とホール抵抗(R_{xy})を評価した。ホール測定で使用した残りの約 $5 \times 10 \text{ mm}^2$ の試料で SSPC 測定を行った。

【結果】 $\text{Al}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{N}$ (23nm)/GaN (0.93 μm) 界面に AlN 層を 0.6 nm 挿入したものとし、ヘテロ構造を作製した。GaN(1012)ロッピングカーブ半値幅は 248、220 arcsec と結晶学的にはほぼ同等のチャンネル層が形成されていた。AlGaN 障壁層を $2 \times 2 \mu\text{m}$ 角の領域で AFM 観測したところ表面粗さ RMS 値はそれぞれ 0.26、0.40 nm、ピット数は 5×10^8 、 $6 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 個とほぼ同等の表面形状をしていた。2 つの試料を低温強磁場測定したところ、ともに 2DEG がシュブニコフ・ド・ハース(SdH)振動が観測される程良好な界面であった。 R_{xx} と R_{xy} との交点から求めた移動度はそれぞれ 27,000、17,000 cm^2/Vsec 、磁場の逆数で SdH 振動をフーリエ変換して求めたキャリア濃度は 9.5×10^{12} 、 $8.6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ であった。図1に AlGaN/GaN ヘテロ構造試料の SSPC スペクトルを示す。AlN インター層がない場合 (Fig.1(a))、0.8 eV、2.2~3.0 eV、3.3 eV 付近に光容量変化の増加が見られ、それぞれ A、B、C として欠陥分布の様子を図中に示す。特に AlN 挿入層がない場合には 0.8 eV 付近で $\Delta C/C_0$ が大きくなっている。これは伝導帯直下に多くの欠陥密度が存在することを示している。一方、AlN 挿入層がある場合には 0.8 eV 付近の信号強度は急激に減少していた (Fig. 1(b))。これは価電子帯上端から 0.8 eV 付近への電子遷移を示し、伝導帯直下には欠陥準位が存在しないことを示す。そのために AlN 挿入層がある場合に移動度が高くなったと考えられる。

[1] M. Sumiya et al., JJAP **62**, 085501 (2023).

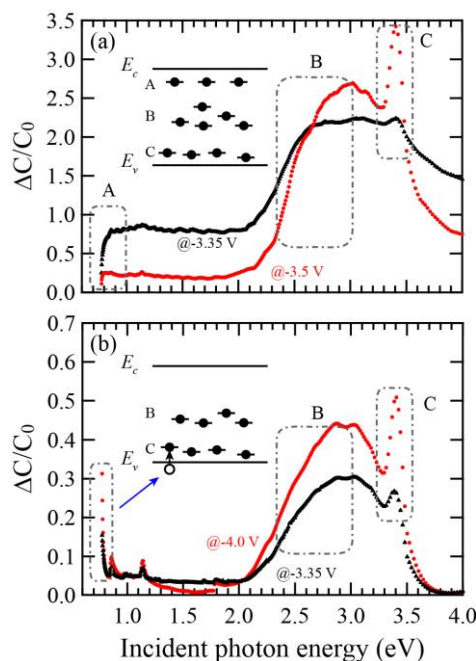


Fig.1 SSPC spectra for AlGaN/GaN heterostructure (a) without AlN and (b) with AlN interlayer measured at various bias voltages.

AlGaIn/GaN 二次元電子ガスにおけるドリフト速度-電界特性の温度依存性 Temperature Dependence of Drift Velocity of 2DEG in AlGaIn/GaN Heterostructure

若本裕介¹, 河原孝彦², 吉田成輝², 牧山剛三², 中田健², 前田拓也¹

東京大学¹, 住友電気工業株式会社²

Y. Wakamoto¹, T. Kawahara², S. Yoshida², K. Makiyama², K. Nakata², T. Maeda¹

Univ. of Tokyo, EEIS¹, Sumitomo Electric Industries, Ltd.²

E-mail: wakamoto@wbgt.t.u-tokyo.ac.jp

GaN HEMT のモデリングにおいて、二次元電子ガス(2DEG)のキャリア輸送特性に対する正確な理解が重要である。これまでに我々は、 n^+ -GaN コンタクト層により低いコンタクト抵抗を有する Transfer Length Method (TLM) パターンを形成し、自己発熱の影響を排除するためパルス I - V 測定を行い 2DEG のドリフト速度の精密評価を室温下にて実施してきた[1]。本研究では、同構造を用いて 25 K から 573 K の幅広い範囲においてドリフト速度の温度特性を評価したので報告する。

半絶縁性 SiC 基板上に AlGaIn (15 nm)/GaN ヘテロ接合を有機金属気相成長法(MOVPE)により成長した。AlGaIn 層の Al 組成は 20%と 30%の 2 種類を用意した。AlGaIn 層除去のためのドライエッチングを行ったのち、MOVPE によって n^+ -GaN コンタクト層を選択再成長した。その後 Ti/Au 電極を EB 蒸着した。TLM 測定を行い、片側接触抵抗は非常に低い値(0.4-0.6 Ω mm)であった。Hall 効果測定により 2DEG 濃度(Al 20%: $8.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, Al 30%: $1.3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$)と高い移動度($\sim 1500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$)を得た。シート抵抗は TLM 測定で得た値と一致している(Al 20%: 490 $\Omega/\text{sq.}$, Al 30%: 320 $\Omega/\text{sq.}$)。TLM 構造に対し、パルス I - V 測定を 25 K から 573 K の範囲で行った。測定した電圧と電流からコンタクト抵抗分の電圧降下を補正したうえで電界とドリフト速度を得た。図 1 に 25 K, 298, 573 K において得られた Al20%での速度-電界特性を示す。様々なギャップ長にて一様な値が得られており、値の信頼性を裏付けている。温度上昇につれて、低電界において移動度が著しく減少しているだけでなく、高電界におけるドリフト速度もわずかに減少している。図 2 に Al20% (ピンク)と Al30% (赤)における 2DEG の最大ドリフト速度の温度依存性を示す。室温下にて 2DEG 濃度増加に伴いドリフト速度が減少していることが報告されてきたが[1, 2], 低温・高温下でもその傾向は変わらなかった。最大ドリフト速度は 25 K から ~ 250 K まではほぼ一定であり、その後わずかな割合で減少していき、やがて再び一定の値に落ち着いた。データに基づいて得た経験式は黒点線にてよくフィットした。この温度依存性は、主に 2DEG の高電界下での電子状態(E - k 分散における分布)の熱ゆらぎによる極性光学フォノン放出率の違いに起因していると考えられる。

謝辞 本研究の一部は、JSPS 科研費 22K20423, 23K13362 および公益財団法人カシオ科学振興財団、公益財団法人スズキ財団の助成を受けて実施されました。また、本研究の一部のデバイス作製は、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業(JPMXP1223UT1184)の支援を受けて、東京大学武田先端知スーパークリーンルーム微細加工拠点において実施されました。

参考文献 [1] 若本 他, 第 71 回応物春, 24p-52A-11 (2024). [2] S. Bajaj *et al.*, *APL* **107**, 153504 (2015).

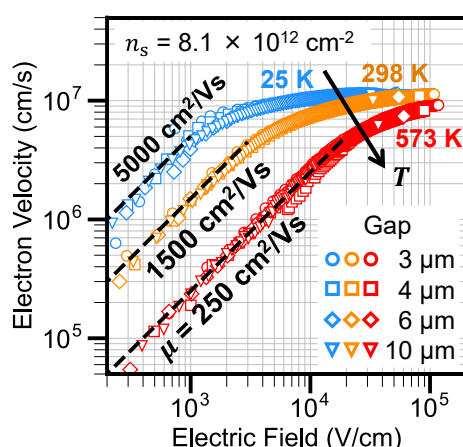


Fig. 1. Velocity-field characteristics of 2DEG in $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}/\text{GaN}$ with various gap lengths in the range from 25 K to 573 K.

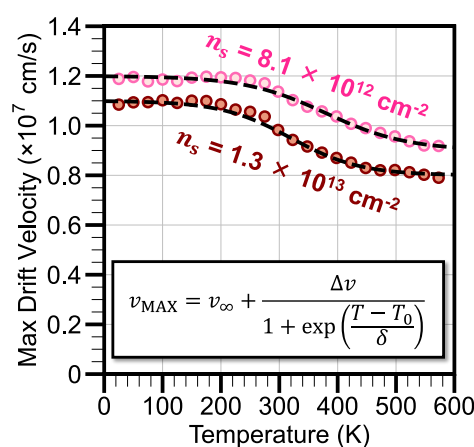


Fig. 2. Temperature dependence of max drift velocity in AlGaIn/GaN at different 2DEG sheet densities. Dashed lines show the calculated values based on an empirical formula.

ScAlN 混晶の分極反転における Sc 組成および格子拘束の影響に関する理論検討 Effects of Sc composition and lattice constraint on polarization switching of ScAlN alloys

三重大院工, ○秋山亨, 宮本拓翔, 河村貴宏

Mie Univ., ○Toru Akiyama, Takuto Miyamoto, Takahiro Kawamura

E-mail: akiyama@phen.mie-u.ac.jp

【はじめに】ScAlN は新たな強誘電体材料として注目を集めている。Sc_{0.43}Al_{0.57}N において高い圧電係数が報告され[1]、強誘電性を示すことも示されている[2]。一方、密度汎関数 (DFT) 計算では、Sc_xAl_{1-x}NにおけるSc組成 $x=0.67$ で分極ウルツ鉱 (WZ) 構造から層状構造への変化が起こり、自発分極が非線形に減少することが報告されている[3]。分極スイッチングについては、Krishnamoorthy らがドメインを起因とする極性反転障壁よりも一様な極性反転による障壁が大幅に大きくなることを提案している[4]。しかしながら、ScAlNの強誘電性におよぼすSc組成および基板の格子拘束の影響に関しては不明な点が多い。これまでに我々は、格子拘束がWZ 構造の安定化に寄与することを明らかにした[5-6]。本研究では、DFT 計算にもとづいてSc 組成と格子拘束が分極反転におよぼす影響を評価する。

Al(Sc)極性からN極性への反転経路およびエネルギー障壁をNudged Elastic Band (NEB) 法を用いて計算する。

【結果および考察】Fig. 1は格子拘束のない場合でのSc_xAl_{1-x}N混晶における分極反転する際のエネルギー変化および構造変化の様子を示したものであり、Fig. 1(a)における両端がそれぞれAl(Sc)極性およびN極性でのエネルギーを示している。Fig. 1(a)から分極反転のエネルギー障壁はSc組成とともに減少し、 $x=0.42$ の場合は0.027 eV/atomと小さくなることがわかる。しかしながら、 $x=0.5$ ではWZ構造は準安定構造としても出現せず、無極性の層状構造が安定となる。一方、AlN および GaN の基板拘束を考慮すると、エネルギー障壁 (約0.33 eV/atom) は増大するものの、 $x=0.5$ においてもWZ 構造が安定構造となる。AlNおよびGaNの面内格子定数はScAlNの格子定数より小さいため、エネルギー障壁の増大は圧縮歪みに起因することが解る。従って、分極反転ひいては強誘電性に対する格子拘束の影響は大きく、引張歪みによりエネルギー障壁を低減させることも期待できる。

【参考文献】[1] M. Akiyama *et al.*, Adv. Mater. **21**, 593 (2009). [2] S. Fischer *et al.*, J. Appl. Phys. **125**, 114103 (2019). [3] K. Furuta *et al.*, J. Appl. Phys. **130**, 024104 (2021). [4] A. Krishnamoorthy *et al.*, Nanotechnology **32**, 49LT02 (2021). [5]宮本他, 第71回応用物理学会春季学術講演会, 25a-P03-11 (2024). [6] T. Miyamoto *et al.*, Extended Abstract of the 2023 International Conference on Solid State Devices and Materials, Himeji, 2024.

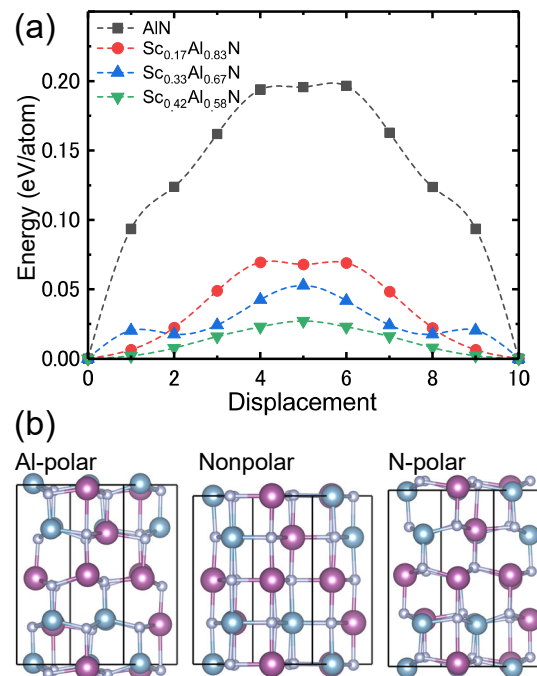


Fig. 1 (a) Energy variations of as a function of displacement of atoms from positive (metal polar) to negative (N polar) polarity in strain-free ScAlN alloys, and (b) side views of structural change for Sc_{0.42}Al_{0.58}N obtained by the NEB calculations. Blue, purple, and gray circles in side views denote Al, Sc, and N atoms, respectively.

エピタキシャル ScAlN/AlGa_N/Ga_N ヘテロ構造の作製

Epitaxial growth of ScAlN/AlGa_N/Ga_N heterostructures

奥田朋也¹, 太田隼輔¹, 河原孝彦², 牧山剛三², 中田健², 前田拓也³, 小林篤¹

Tokyo Univ. of Science¹, Sumitomo Electric Industries², The Univ. of Tokyo³

E-mail: 8224518@ed.tus.ac.jp

ScAlN は GaN との格子不整が小さく、また大きな自発分極を有しているため、GaN-HEMT 用の優れたバリア層材料として注目されている。さらに、近年では、ScAlN の強誘電性を活用した GaN-FeFET の開発が期待されている。現在、MBE 法、MOCVD 法、スパッタ法などによる ScAlN 薄膜の作製が試みられているが、成長条件と物性の関連性は完全には解明されていない。²⁾ スパッタ法は、Sc と Al の組成制御性が高いため、ScAlN 薄膜の作製に適しているが、高品質な ScAlN/GaN ヘテロ構造をエピタキシャル成長させる技術は確立していない。本研究では、AlGa_N/GaN HEMT 上にスパッタ法で ScAlN 薄膜をエピタキシャル成長させ、その構造特性と電気特性の評価を行った。

MOCVD 法で作製した AlGa_N/GaN/SiC 基板上に、ScAlN 薄膜をスパッタ法でエピタキシャル成長させた。薄膜の Sc 組成は Sc, Al ターゲットのスパッタ電力を変えることで制御した。作製した ScAlN/AlGa_N/GaN/SiC ヘテロ構造の結晶性と表面モフォロジーを XRD と AFM で評価し、Sc 組成は EDX によって求めた。ヘテロ構造の上部から電極を形成し、van der Pauw 法によるホール効果測定で電気特性の評価を行った。

図 1 に Sc_xAl_{1-x}N/AlGa_N/GaN/SiC の XRD 2θ/ω スキャンの結果を示す。Sc 組成が 5~20% の範囲で、ScAlN 0002 回折がブリッジを伴って現れた。GaN や AlGa_N の 0002 回折も同様に確認されたことから、ウルツ鉱型 ScAlN(0001)が AlGa_N/GaN 上にエピタキシャル成長していることが分かる。また、Sc 組成の増加に伴って ScAlN の 0002 回折のピーク位置が低角側にシフトしていることが分かる。図 2 に膜厚 21 nm の ScAlN 10 $\bar{1}$ 5 逆格子マッピングを示す。Sc_{0.07}Al_{0.93}N と GaN の Q_x座標と一致していることから、コヒーレント成長していると分かる。AFM 測定を行ったところ、ScAlN 薄膜の成長前後で表面粗さ RMS 値に大きな変化は見られず、エピタキシャル成長によって表面平坦性は損なわれないことが分かった。また、ホール効果測定の結果から、AlGa_N/GaN 上に ScAlN をエピタキシャル成長させた試料では、シートキャリア密度が向上していることが分かった。

参考文献

- 1) P. Wang *et al.*, Semicond. Sci. Technol **38**, 043002 (2023).
- 2) A. Kobayashi *et al.*, Appl. Phys. Express **17**, 011002 (2024).

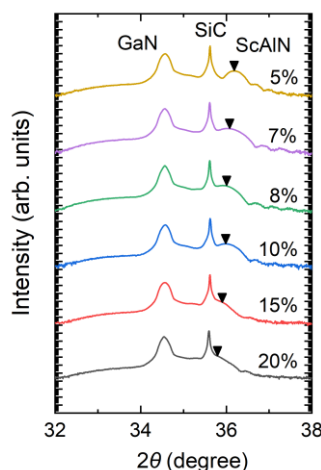


Fig 1. XRD 2θ/ω scan of ScAlN/AlGa_N/GaN/SiC heterostructure

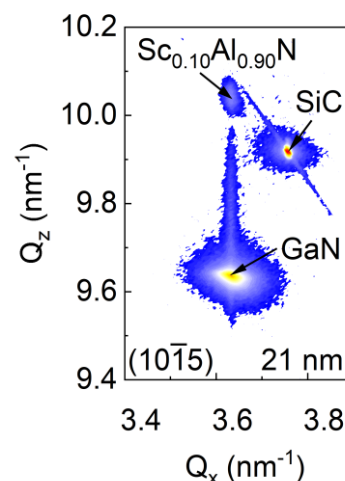


Fig. 2 RSM of Sc_{0.07}Al_{0.93}N/AlGa_N/GaN/SiC