
CS Code-sharing session | Oral presentation | 【CS.1】 Code-sharing Session of 2.3 & 7.4

[20a-A310-1~10] CS.1 Code-sharing Session of 2.3 & 7.4

Kimikazu Sasa(U. Tsukuba), Natsuko Fujita(JAEA)

Wed. Sep 20, 2023 9:00 AM - 11:45 AM A310 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

[20a-A310-1] Study on natural iodine isotope system 1

○Hiroyuki Matsuzaki¹, Miwako Toya¹, Yuanzhi Qi¹ (1.MALT Tokyo Univ.)

9:00 AM - 9:15 AM

▼[20a-A310-2] Iodine isotopes track the iodine cycling in the Beaufort, Chukchi, and Bering Seas

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

9:15 AM - 9:30 AM

[20a-A310-3] Research of annual variations of ¹⁴C concentrations in pinus pumila V

○Mirei Takeyama^{1,2}, Toru Moriya^{1,2}, Hirohisa Sakurai², Hiroko Miyahara³, Fuyuki Tokanai^{1,2} (1.Yamagata Univ. Center for AMS, 2.Yamagata Univ., 3.Musashino Art Univ.)

9:30 AM - 9:45 AM

[20a-A310-4] Development of sample injection system for tritiated water analysis based on cavity ring-down spectroscopy

○Hideki Tomita¹, Kazuki Iwamoto¹, Momo Mukai¹, Keisuke Saito¹, Yuta Suzuki¹, Kota Tsuge¹, Norihiko Nishizawa¹, Ryu Uemura², Osamu Abe², Hisashi Abe³, Minami Amano³ (1.Grad. School of Eng., Nagoya Univ., 2.Grad. School of Env. Studies, Nagoya Univ., 3.AIST)

9:45 AM - 10:00 AM

[20a-A310-5] Research and Development for Accelerator Mass Spectrometer at JAEA-AMS-TONO; 2022FY

○Natsuko Fujita¹, Masayasu Miyake¹, Akihiro Matsubara², Masahiro Ishii³, Satoshi Jiino¹, Takahiro Watanabe¹, Tomohiro Nishio², Yumi Ogawa¹, Kenji Kimura¹, Akiomi Shimada¹, Yuto Takahashi³, Koji Shimada¹ (1.JAEA, 2.PESCO, 3.Beam Ope.)

10:00 AM - 10:15 AM

[20a-A310-6] Status report of the MALT, The University of Tokyo - Autumn 2023 -

○Takeyasu Yamagata¹, Qiuyu Yang², Yuanzhi Qi¹, Hironori Tokuyama¹, Yoko Tsuchiya¹, Miwako Toya¹, Hiroyuki Matsuzaki^{1,2} (1.MALT, The Univ. of Tokyo, 2.NEM, The Univ. Tokyo)

10:30 AM - 10:45 AM

[20a-A310-7] Present states of TCU-Tandem - Status of educational use -

○Naoto Hagura¹ (1.TCU)

10:45 AM - 11:00 AM

- [20a-A310-8] Measurement of Hydrogen Isotope Ratios by Transmission ERDA using 8 MeV He Ion Beams
○Kimikazu Sasa^{1,2}, Hiroshi Kudo¹, Hiroshi Naramoto¹, Masao Sataka¹, Satoshi Ishii¹, Shigeo Tomita² (1.UJTAC, Univ. Tsukuba, 2.Pure Appl. Sci., Univ. Tsukuba)
11:00 AM - 11:15 AM
- △[20a-A310-9] Incident particle dependence of the energy of secondary electrons emitted from monolayer graphene by fast cluster ion beam irradiation
○(M2)Naruki Uno¹, Takuya Majima¹, Manabu Saito¹, Hidetsugu Tsuchida¹ (1.Kyoto Univ.)
11:15 AM - 11:30 AM
- [20a-A310-10] Increasing of solid angle and improvement of detection efficiency for TOF-ERDA system
○Haruya Fujii¹, Satoshi Senda¹, Chika Hasegawa¹, Tomoki Shima¹, Keisuke Yasuda¹, Syuri Nakamizo², Takuya Majima² (1.Kyoto Pref. Univ., 2.Kyoto Univ.)
11:30 AM - 11:45 AM

自然環境におけるヨウ素同位体システムの研究 1

Study on natural iodine isotope system 1

東大 MALT, °松崎 浩之, 戸谷 美和子, Qi Yuanzhi

MALT, The University of Tokyo, °Hiroyuki Matsuzaki, Miwako Toya, Yuanzhi Qi

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

現代の地球表層環境に存在するヨウ素 129 (半減期 1570 万年) はその大部分が人為起源のものである。人為起源のヨウ素 129 は、大気圏核実験や使用済み核燃料再処理の過程で環境中に漏洩したものであり、1950 年台から急増し、環境中のさまざまなアーカイブ中に記録されていることから、アンソロポシオン (人新世) を示すマーカーとしての役割が注目されている [1]。

一方で、自然環境においても、ヨウ素 129 は生成している。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。ヨウ素は地球表層環境中に遍在している元素であることを考えると、生成したヨウ素 129 と地球上に存在する安定同位体ヨウ素 127 がよく混合し、その割合が定常状態にあるような系が存在すれば、放射性炭素年代測定と同様に、年代測定が可能となる可能性がある。

また、宇宙線で生成するヨウ素 129 のみが記録されたアーカイブの分析が可能であれば、新たな宇宙線の時系列変動の指標となる。しかも半減期が長いため、1,000 万年オーダーの時系列記録を得られる可能性がある。

こうした、自然環境のヨウ素同位体システムの研究は、先に述べた人為起源のヨウ素 129 の妨害によって、困難な状況である。まずは、環境中で自然環境で生成したヨウ素 129 を分離することが難しい。この点に関しては、環境中でのコンタミネーションに注意すれば、古い年代のアーカイブや、深部海水・地下水などが貴重な試料となる。ついで、こうした試料を処理するための実験室環境におけるコンタミネーションが問題となる。最後に、一般に自然環境で生成したヨウ素 129 は生成量が小さいため、加速器質量分析測定時における同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) が低くなるため、高感度な加速器質量分析システムが必要となる。

筆者らは、最近の実験技術の向上や、人為起源ヨウ素 129 の動態に関する知見の蓄積により、自然環境におけるヨウ素同位体システムを研究する準備が整ってきたと考えている [2]。今後、この研究課題を進めるにあたり、現在得られている自然環境で生成したヨウ素 129 のデータ (深海、地下水等) をまとめ、今後の展望について議論する。

参考文献

[1] A.T. Bautista VII, et al. (2023) Science of the Total Environment, 887, 164021.

[2] H. Matsuzaki, et al. (2020) Nuclear Inst. And Methods in Physics Research, B463 47, 55-63.

Iodine isotopes track the iodine cycling in the Beaufort, Chukchi, and Bering Seas

The Univ. of Tokyo ¹, Nihon Univ. ², JAMSTEC ³, °(P) Yuanzhi Qi¹, Qiuyu Yang¹, Takeyasu Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Hisao Nagai^{1,2}, Yuichiro Kumamoto³
E-mail: yuanzhiqi@um.u-tokyo.ac.jp

Due to its unique geographical location, the Arctic Ocean and its neighboring seas exhibit heightened vulnerability to climate change. Consequently, the intricate material and energy cycles within these regions exert a profound influence on global climate patterns. Iodine emissions to the atmosphere from high-latitude seas near the Arctic Ocean have gradually increased over the past few decades as Arctic sea ice has decreased due to global warming. The emission of iodine from the ocean to the atmosphere is closely related to the iodine cycle and the iodine speciation distribution in seawater. In this study, we present our observations regarding the concentrations of different iodine isotopes (¹²⁷I and ¹²⁹I) encompassing total iodine (TI), iodide (I⁻), and iodate (IO₃⁻) in seawater samples. Two depth profiles were collected in the Beaufort Sea, along with an additional collection of 15 surface seawater samples obtained from the Beaufort, Chukchi, and Bering Seas between 12 August and 6 October 2022.

At different ocean depths, the distribution of iodine is controlled by a variety of water masses, such as Pacific water, Atlantic water, and freshwater. In the surface ocean, the salinity and iodine speciation analysis results can clearly distinguish the Beaufort Sea from the other two seas, and in different sea areas, the isotopic characteristics of different iodine species were significantly correlated with salinity (Fig.1). Considering the three large rivers (Mackenzie, Yukon, and Kuskokwim) injected into the study area, we can reasonably speculate that rivers are the key factors affecting the iodine circulation and distribution in the surface ocean of this region. The Arctic intermediate water contained iodine isotopic signatures consistent with those of the North Atlantic. The upper ocean was dominated by the net reduction from IO₃⁻ to I⁻ due to the biological activities of phytoplankton, while the net oxidation from I⁻ to IO₃⁻ is mainly in the intermediate and deep ocean. Simulation of iodine cycling based on isotopic signatures of different iodine species revealed the presence of the reduction process from IO₃⁻ to I⁻ and the iodide input from sediments to seawater in Arctic intermediate water. The oxidation, reduction, and iodide input rates were 0.95 ~ 2.41, 0.26 ± 0.13, and 0.23 ± 0.14 nM/year, respectively. Our study indicates that ¹²⁹I can provide essential and detailed information for the iodine cycling study.

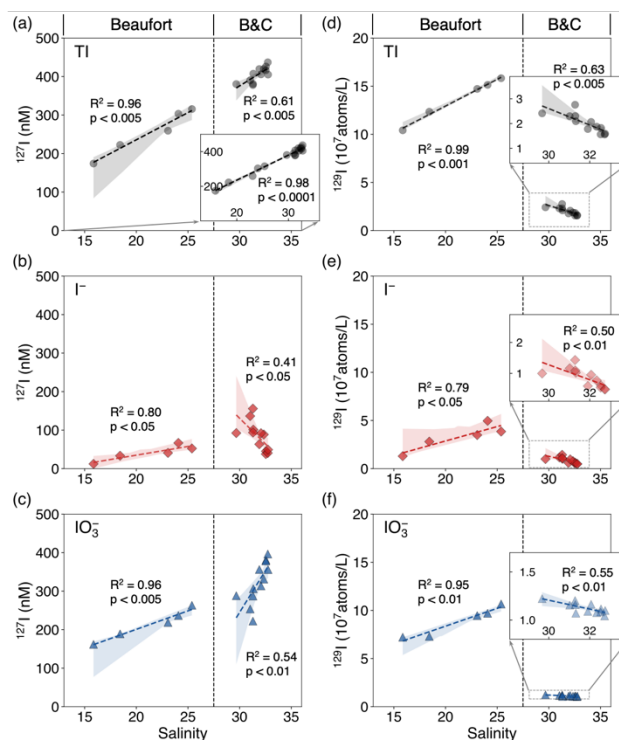


Fig.1. Correlations between isotopic characteristics of iodine species and salinity

ハイマツ試料中放射性炭素濃度の年変動に関する研究 V Research of annual variations of ^{14}C concentrations in pinus pumila V

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}

Yamagata Univ. Center for AMS¹, 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光合成により植物内に移行する。宇宙線の強度は、太陽活動の変動や宇宙線増加現象を反映するため、年代の判明している古木年輪の ^{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が調べられてきた[1-4]。しかしながら、1945 年以降の大気圏核実験で大気中の ^{14}C 濃度が急激に増加し、1963 年のピーク時には核実験前の約 2 倍程度に達した。核実験中止後は海洋との二酸化炭素交換により ^{14}C 濃度は減少し、現生の大気中の ^{14}C 濃度は、ほぼ核実験前の濃度に戻りつつある。したがって、現生の単年植物中の ^{14}C 濃度を加速器質量分析 (AMS) 法により高精度に分析することで、太陽活動や宇宙線増加に起因する生態系中の ^{14}C 濃度依存性をリアルタイムで測定できると期待される。

そこで、我々は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 濃度測定を行った。試料の ^{14}C 濃度測定には、AMS システムおよびグラフィイト作製システムからなる山形大学高感度加速器質量分析装置 (YU-AMS) を使用した。図 2 に各試料の採取年に対する球果中の ^{14}C 濃度と太陽黒点数[5]を示す。乗鞍岳で採取したハイマツ試料の ^{14}C 濃度は 2018 年から 2021 年にかけて減少し、2022 年は若干増加した。蔵王山のハイマツ試料の ^{14}C 濃度は 2018 年から 2022 年にかけて減少した。天童市のマツ試料の $\Delta^{14}\text{C}$ は、乗鞍岳および蔵王山のハイマツ中の $\Delta^{14}\text{C}$ と比較していずれの年も低い値を示し、採取年に対する依存性は見られなかった。東京都のマツ試料は他の試料と比べ、いずれの年も最も低い $\Delta^{14}\text{C}$ 値を示し、2019 年以降は減少傾向を示した。本講演では、より詳細な測定結果について報告する。

- [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.



図 1. 試料に用いたハイマツの球果(左)と葉(右)

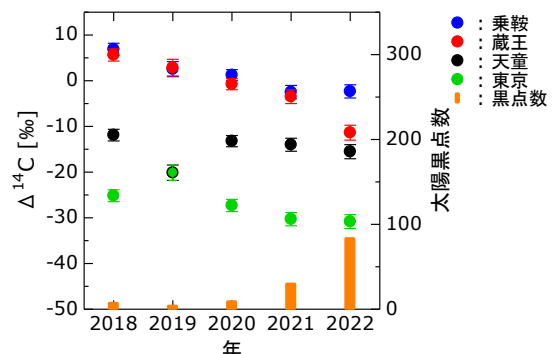


図 2. ハイマツ・マツ球果の採取年に対する $\Delta^{14}\text{C}$ 濃度と太陽黒点数

キャビティリングダウン分光に基づくトリチウム水分析のための試料導入法の開発

Development of sample injection system for tritiated water analysis based on cavity ring-down spectroscopy

¹名大院工, ²名大院環, ³産総研

○富田 英生¹, 岩元 一輝¹, 向井 もも¹, 齊藤 圭亮¹, 鈴木 勇太¹, 柘植 紘汰¹,
西澤 典彦¹, 植村 立², 阿部 理², 阿部 恒³, 天野 みなみ³

¹Grad. School of Eng., Nagoya Univ., ²Grad. School of Env. Studies, Nagoya Univ., ³AIST

○Hideki Tomita¹, Kazuki Iwamoto¹, Momo Mukai¹, Keisuke Saito¹, Yuta Suzuki¹, Kota Tsuge¹,
Norihiko Nishizawa¹, Ryu Uemura², Osamu Abe², Hisashi Abe³, Minami Amano³

E-mail: h-tomita@energy.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに

トリチウム (T) は半減期約 12 年の β 壊変核種であり、 β 粒子を計数する液体シンチレーションカウンティングによる分析が広く行われている。一方、生体・環境トレーサー、廃棄物分析などの応用においては、前処理が簡便で、測定による有機廃棄物が生じない迅速・簡便かつ高感度なトリチウム分析システムが求められている。そこで、本研究では、超高感度赤外レーザー吸収分光 (Cavity Ring Down Spectroscopy : CRDS) に基づくトリチウム水分析法の開発を行っている。CRDS では、2 枚の高反射率鏡で構築される光共振器内をガス試料で満たして分析を行う。光共振器内に連続発振レーザー光を入射すると、波長と共振器長が共鳴条件を満たした時、光が共振器内に蓄積される。光共振器からの漏れ光を検出し、閾値を超えた時に瞬間的に入射光を遮断することで透過光強度は指数関数的に減衰する (リングダウン信号)。この信号の減衰率は、吸収物質の分子数密度に相関があり、共振器内での多重反射により実効的な光路長が長く確保できることに加えて、レーザー強度の変動の影響を受けないため、超高感度な分析が実現できる。今回は、CRDS によるトリチウム水分析に向けた微量水分試料導入法^[1]について報告する。

2. トリチウム分析に向けた微量水分試料導入法の開発と HDO スペクトルの取得

水分子は物質に非常に吸着しやすい性質があるため、前の試料の水分子が体系内に吸着し、コンタミネーションとして次の測定に悪影響を及ぼす。そこで、一連の測定でコンタミネーションが発生しないように、Flow through 法に基づく微量水分試料導入系を開発した。Flow through 法では、常に水蒸気が連続的に流れているため、チューブやガスセル内に吸着している分子が速やかに置換され、コンタミネーションの影響を効果的に除去できる。開発した導入系を用いて HDO を含む試料を導入した際の圧力変動とその際に得られた CRDS スペクトルを Fig.1 に示す。試料導入時は HDO のスペクトルを取得できたのに対して、導入後はスペクトルが消失したことからコンタミネーション効果を抑制した導入系であることが確認できた。

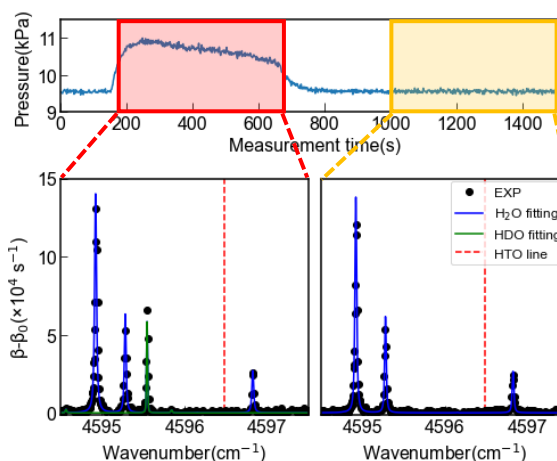


Fig.1 Time trend of gas pressure in the gas cell (upper) and CRDS spectra during (left) and after (right) sample introduction

参考文献 [1] K. Iwamoto *et al.*, Proceed. Optica Advanced Photonics Congress 2022 JTU6A.7, (2022).

謝辞 本研究は、JST CREST JPMJCR2104 の支援を受けて行われた。

**JAEA-AMS-TONO における
加速器質量分析装置に関する研究開発; 2022 年度
Research and Development for Accelerator Mass Spectrometer
at JAEA-AMS-TONO; 2022FY**

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, 三宅正恭¹, 松原章浩², 石井正博³, 神野智史¹, 渡邊隆広¹, 西尾智博²,
小川由美¹, 木村健二¹, 島田顕臣¹, 高橋悠人³, 島田耕史¹

Japan Atomic Energy Agency (JAEA)¹, PESCO Co., Ltd.², Beam Operation Co., Ltd.³,
°Natsuko Fujita¹, Masayasu Miyake¹, Akihiro Matsubara², Masahiro Ishii³, Satoshi Jinno¹,
Takahiro Watanabe¹, Tomohiro Nishio¹, Yumi Ogawa², Kenji Kimura¹, Akiomi Shimada¹,
Yuto Takahashi³, 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 核種に加えて、地下水の年代測定に有用な塩素-36 (³⁶Cl) の測定に向けた技術開発も実施している。

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、検出部において質量 14 の電流を計測した。今後、¹⁴C 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、微量 ¹⁴C 試料の前処理法や測定方法の検討、³⁶Cl 測定のための硫黄-36 除去方法の検討などを含む、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.

東京大学 MALT の加速器質量分析の現状 - 2023 秋 -

Status report of the MALT, The University of Tokyo - Autumn 2023 -

東京大学 MALT¹ ○山形武靖¹, 楊秋語², Yuanzhi Qi¹, 徳山裕憲¹, 土屋 (春原) 陽子¹,
戸谷美和子¹, 松崎浩之^{1,2}

MALT, The Univ. of Tokyo¹, NEM, The Univ. of Tokyo², Takeyasu Yamagata¹, Qiuyu Yang²,
Yuanzhi Qi¹, Hironori Tokuyama¹, Yoko Sunohara Tsuchiya¹, Miwako Toya¹, Hiroyuki Matsuzaki^{1,2}

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 社製ペルトロン 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。

本講演では特に最近飛躍的に性能が向上した ^{236}U -AMS について紹介する。 ^{236}U (半減期 2.34 x 10^7 y)は人為起源放射性核種として、福島第一原子力発電所のデブリの燃焼度解析、核実験または再処理工場から放出された成分の海洋トレーサーへの利用など今後の応用研究の展開が見込まれる。東京大学 MALT の ^{236}U -AMS システムにおいて検出器をガスカウンターから TOF 検出器に変更したことによって ^{235}U の妨害が低減し、バックグラウンドが $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 3 \times 10^{-12}$ に向上したことを 2022 年秋期学術講演会で紹介した。 ^{236}U のターゲット作成について検討し引き出すビームカレントの向上を行い、北極海の海水中 ^{236}U 濃度の測定を行った。海水中で U は炭酸錯体となって保存成分として振る舞い、海水とともに移動する。北極海における主な起源は La Hague と Sellafield の核燃料再処理工場から放出された成分である。 ^{236}U 放出量は 1985 年から 1995 年が多く、その後は減少し一定である、同時に放出される ^{129}I は 1990 年から放出量が増加しており、 $^{129}\text{I}/^{236}\text{U}$ は北極海に流入した年代によって大きく異なるため、採取点の海水の年代の指標となる。そこで北極海の海水循環の年代指標として海水中 ^{236}U 濃度と ^{129}I 濃度を測定した。北極海の表層海水中 ^{236}U 濃度はほぼ一定であった。ボーフート海の深度分布は表層 1×10^7 atoms kg^{-1} であった。50 m 付近は太平洋起源の水塊が流入した影響によって $(0.5 - 1) \times 10^7$ atoms kg^{-1} に減少し、100 - 1000 m にかけて大西洋起源の再処理工場で放出された ^{236}U を含む水塊の影響によって $(2 - 3) \times 10^7$ atoms kg^{-1} にピークを持ち、深層に向けて減少する分布を示した。

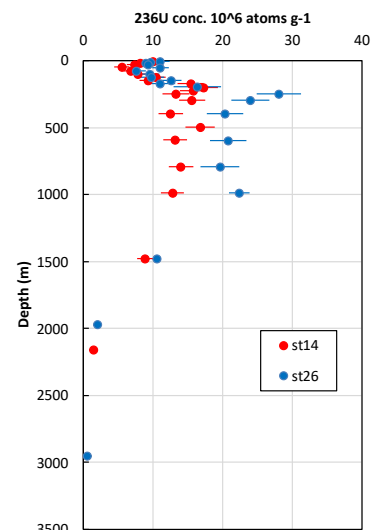


Fig. 1 The Depth profile of ^{236}U concentration in the Arctic Ocean.

都市大タンデムの現状 ～教育利用の状況～
Present states of TCU-Tandem - Status of educational use -

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ペレットロン・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。SDD（silicon drift detector, Amptek）を用いたエネルギー分散型の荷電粒子線励起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、運用開始から5年を経過した当施設のタンデム加速器の主に教育利用での状況を報告する。

[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

8 MeV He イオンビームを用いた透過 ERDA による 水素同位体比の測定

Measurement of Hydrogen Isotope Ratios by Transmission ERDA using 8 MeV He Ion Beams

筑波大加速器¹, 筑波大数物² ○笹 公和^{1,2}, 工藤 博¹, 檜本 洋¹, 左高 正雄¹,
石井 聡¹, 富田 成夫²

UTTAC, Univ. Tsukuba¹, Pure and Applied Sciences, Univ. Tsukuba², °Kmikazu Sasa^{1,2}, Hiroshi
Kudo¹, Hiroshi Naramoto¹, Masao Sataka¹, Satoshi Ishii¹, Shigeo Tomita¹

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

弾性反跳検出分析 (ERDA: Elastic Recoil Detection Analysis)は、加速イオンの原子核とターゲット原子の相互作用に基づくため、物質中の軽元素、特に水素の検出に利用されてきた。ERDA による粒子検出は、ターゲット原子の質量に依るため、十分な質量分解能があれば物質中の同位体に関する情報を得ることができる。本研究では、透過レイアウトの ERDA (T-ERDA)を用いて、厚さ 2.5 μm の Mylar (ポリエチレンテレフタレート, $(\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4)_n$)と厚さ 1.35 μm の PPS (ポリフェニレンサルファイド, $(\text{C}_6\text{H}_4\text{S})_n$)の薄い水素含有フィルム中の水素 (H)と重水素 (D)の含有比率を測定した。T-ERDA の検出角度が 0° の場合、 ^4He イオンのエネルギーが 8–10 MeV のときに H と D の反跳断面積は $1\text{--}2\text{b/sr}$ と大きく向上する[1], [2]。したがって、T-ERDA は H だけでなく、D も同時に検出することが可能となる。また、T-ERDA は定量分析において参照試料を必要としない利点もある。

筑波大学 6MV タンデム加速器からの 8 MeV の $^4\text{He}^{2+}$ ビームを用いて、 2×10^{-5} Pa の圧力下で実験を実施した。 $^4\text{He}^{2+}$ ビームは、試料上の $\sim 0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$ に集束された。Mylar フィルムと PPS フィルムの裏側には、入射した $^4\text{He}^{2+}$ が粒子検出器に入ることを防ぐため、厚さ 20 μm または 25 μm の Ni 箔を設置した。反跳 H と D のエネルギーは、Ni 箔を通過した後に 0° から 3.78° の角度範囲で 33 keV の分解能を有するシリコン表面障壁型半導体検出器で測定された。ビーム電流値は試料ホルダーに取り付けられたファラデーカップによって測定され、0.5–0.7 nA で 15–60 分間の T-ERDA スペクトルを取得した。反跳 H と D の T-ERDA スペクトルより、Mylar フィルムの場合、決定された D/H 比と対応する D 密度(atoms/cm³)は、それぞれ $(1.65 \pm 0.08) \times 10^{-4}$ と $(5.75 \pm 0.28) \times 10^{18}$ となった。また、PPS フィルムでは、 $(1.64 \pm 0.08) \times 10^{-4}$ と $(4.93 \pm 0.24) \times 10^{18}$ となった。本研究は、T-ERDA が物質中の D/H 比の非破壊測定に広く適用できることを示すものである。

参考文献

- [1] H. Kudo, H. Naramoto, M. Sataka, S. Ishii, K. Sasa, S. Tomita, J. Phys.: Con-dens. Matter **33**, 465901 (2021).
- [2] H. Kudo, M. Kurosawa, H. Naramoto, M. Sataka, S. Ishii, K. Sasa, S. Tomita, J. Phys.: Condens. Matter **34**, 435902 (2022).

高速クラスターイオンビーム照射による単層グラフェンから放出される二次電子エネルギーの入射粒子依存性

Incident particle dependence of the energy of secondary electrons emitted from monolayer graphene by fast cluster ion beam irradiation

京大院工 ○(M2)宇野 鳴記, 間嶋 拓也, 斉藤 学, 土田 秀次

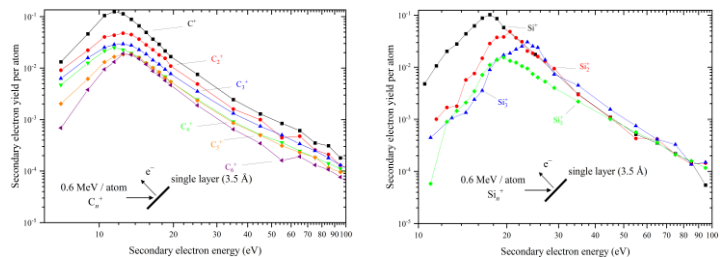
Kyoto Univ. °Naruki Uno, Takuya Majima, Manabu Saito, Hidetsugu Tsuchida

E-mail: uno.naruki.46a@st.kyoto-u.ac.jp

高速クラスターイオンビームは、特有の照射効果があることが知られており、物質分析への応用が期待されている。クラスター特有の照射効果は、クラスター構成原子が集団となって標的の電子系にエネルギー付与をすることに起因している。したがって、生成された二次電子のエネルギーを測定することは、エネルギー付与過程の解明のために繋がる。しかし、以下の2つの課題により未だ基礎過程の解明には至っていない。(i) クラスター構成原子は、標的内で核間距離が広がり、集団としての照射効果が消失してしまう。(ii) 生成された二次電子は固体内で励起、電離によってエネルギーを失いながら輸送され、表面から放出される。この輸送過程があることにより、二次電子の発生時におけるエネルギー分布を測定することが困難になっている。これら2つの問題は標的の膜厚が主な原因となっている。これを解決するために、我々は標的に単層グラフェン膜を使用した。

実験は、京都大学工学研究科附属量子理工学教育センターの2 MV タンデム型ペルトロン加速器を用いて行った。自立単層グラフェン膜に0.6 MeV / atom C_n^+ と Si_n^+ のクラスターイオンビームを照射し、膜からビームの入射方向に対して後方に放出した二次電子を阻止電場型エネルギー分析器で測定した。

図に、単層グラフェンから放出した二次電子のエネルギー分布を示す。縦軸はクラスター構成原子一個あたりの二次電子収量を示す。クラスターサイズが増加することで、二次電子収量が低下していることが分かる。また、 C_n^+ と Si_n^+ 照射を比べると、 Si_n^+ 照射の方がピークを持つ二次電子のエネルギーが大きいことがわかる。これは、 Si_n^+ の方が、原子番号が大きく、クーロン相互作用において、エネルギー移行が大きいイベントが多く起こるからであると考えられる。発表では、誘電応答関数を用いて、入射粒子によるエネルギー移行の違いから、高速クラスターイオンビーム照射による二次電子エネルギー分布を解析した結果を示す。



0.6 MeV / atom C_n^+ と Si_n^+ を単層グラフェンに照射して後方に放出される二次電子エネルギー分布。

TOF-ERDA 装置の大立体角化と検出効率の向上

Increasing of solid angle and improvement of detection efficiency for TOF-ERDA system

京府大生命環¹, 京大院工² ○(M1)藤井 晴也¹, (B)仙田 敬¹, 長谷川 千華¹, 島 始輝¹
安田 啓介¹, (M1)中溝 珠里², 間嶋 拓也²

Kyoto Prefectural Univ.¹, Kyoto Univ.², °Haruya Fujii¹, Satoshi Senda¹, Chika Hasegawa¹,
Tomoki Shima¹, Keisuke Yasuda¹, Syuri Nakamizo², Takuya Majima²

E-mail: s823632026@kpu.ac.jp

近年、安全性が高い次世代の二次電池である全固体リチウムイオン二次電池 (ASSLB) の開発が進んでいる。電池の高性能化には固体電解質と電極の界面の電圧印加に伴うリチウムイオンの挙動を微視的に解明することが重要である。我々は、ASSLB 内の充放電時のリチウムイオン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 装置は上流の透過型検出器 (T1) と下流の透過型検出器 (T2) と 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。透過型検出器はフォイル、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。粒子がフォイル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。本発表では、T2 の有感領域増大による装置の大立体角化と T1 の MCP 検出器変更による検出効率の向上について報告する。

本装置は T2 に厚さ $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 直径 $25 \text{ mm}\phi$ のカーボンフォイルを使用する設計であったが、カーボンフォイルが破れてしまい装着できず、代わりに $15 \text{ mm}\phi$ のフォイルを使用していた。そこで我々は、フォイルホルダをワイヤーで補強することで $25 \text{ mm}\phi$ のフォイルを作製した。フォイル変更後の立体角は 0.42 msr であり変更前の 0.16 msr と比較すると 2.6 倍となった。また透過型検出器のリチウムに対する検出効率は T2 の値が 90% 以上であったが、T1 の値は 50~60% と低かった。そこで T1 の MCP 検出器の有感領域が $14.5 \text{ mm}\phi$ のものから T2 と同じ $27 \text{ mm}\phi$ のものに変更し、検出効率の変化を調べた。Fig. 1 に T1 の MCP 検出器変更前後のリチウムの検出効率を示す。T1 の MCP 検出器を変更することで T1 のリチウムの検出効率は 50~60% から 70~80% に改善された。

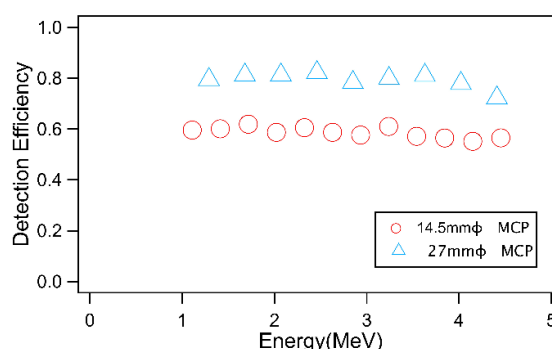


Fig.1 Detection efficiency of the transmission detector for lithium with a MCP of a sensitive area of $14.5 \text{ mm}\phi$, (○) and $27 \text{ mm}\phi$, (△), respectively.

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.1] Code-sharing Session of 2.3 & 7.4

[20p-A310-1 ~ 12] CS.1 Code-sharing Session of 2.3 & 7.4

Noriaki Toyoda(Univ. of Hyogo), Makiko Fujii(Yokohama National Univ.)

Wed. Sep 20, 2023 1:30 PM - 4:45 PM A310 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

- [20p-A310-1] [Young Scientist Presentation Award Speech] Mechanism of Au nanowire formation by thermal evaporation of Au on a Si substrate irradiated with low-energy ions
 ○Hitomi Mizutani¹, Shunya Yamamoto², Katsumi Takahiro¹ (1.Kyoto Inst. Tech., 2.QST Takasaki)
 1:30 PM - 1:45 PM
- [20p-A310-2] Negative-cluster ion beam production using protic ionic liquid and its bombardment effects
 ○Yukio Fujiwara¹ (1.AIST)
 1:45 PM - 2:00 PM
- [20p-A310-3] MeV-SIMS Measurement of Negative Electrode Surface of Lithium Ion Battery at Atmospheric Pressure (III)
 ○Toshio Seki¹, Jiro Matsuo¹ (1.Grad. Sch. of Eng., Kyoto Univ.)
 2:00 PM - 2:15 PM
- [20p-A310-4] Desorption/ionization processes of benzyl pyridinium molecules by Ar and water cluster ion beam irradiation
 ○Kousuke Moritani¹, Taisei Toku¹, Norio Inui¹ (1.Univ. of Hyogo)
 2:15 PM - 2:30 PM
- △[20p-A310-5] Study on polymer desorption process under cluster ion beam bombardment
 ○Yuri Mizutani¹, Yuki Koshishita², Hayate Yoshizawa², Toshio Seki³, Jiro Matsuo³, Makiko Fujii^{1,2} (1.Dept. of Yokohama Natl. Univ., 2.Grad. Sch. of Yokohama Natl. Univ., 3.Grad. Sch. of Kyoto Univ.)
 2:30 PM - 2:45 PM
- [20p-A310-6] Kinetic energy distributions of Ar^{q+} ($q = 7$ and 8) ion beams guided by cylindrical glass channels
 ○Yuya Kazamatsuri¹, Tomoaki Seki¹, Mari Yuasa², Souichiro Oyama², Kenji Motohashi^{1,2} (1.Toyo Univ. Grad. Sch. of Engi. and Sci., 2.Toyo Univ. Sci. Eng.)
 2:45 PM - 3:00 PM
- [20p-A310-7] Substrate cooling dependence of metal etching using reactive gas adsorption and O₂-GCIB
 ○Kohdai Sakuta¹, Masaya Takeuchi¹, Noriaki Toyoda¹ (1.Hyogo Univ.)
 3:15 PM - 3:30 PM
- [20p-A310-8] Dry Atomic layer Etching of metal films by neutral cluster beam
 ○Hideyuki Tanaka¹, Masaya Takeuchi¹, Noriaki Toyoda¹ (1.Univ Hyogo)
 3:30 PM - 3:45 PM

- [20p-A310-9] Ultra-thin electron transmission window using GCIB for high-sensitivity detection of samples in liquid
○Masaya Takeuchi¹, Satoru Suzuki², Noriaki Toyoda¹ (1.Univ. of Hyogo, 2.LASTI,Univ. of Hyogo)
3:45 PM - 4:00 PM
- [20p-A310-10] Evaluation of plasma irradiation damage on Si surfaces by positron annihilation method
○Ruiji Shigesada¹, Masayoshi Ichimiya², Takahiko Ban², Atsushi Yabuuchi³, Atsushi Kinomura³, Junichi Yanagisawa² (1.Grad. Sch. of Univ. of Shiga Pref., 2.Univ. of Shiga Pref., 3.KURNS, Kyoto Univ.)
4:00 PM - 4:15 PM
- [20p-A310-11] Cesium-free operation of a negative hydrogen ion source for neutral beam heating
○Motoi Wada¹, Mamiko Sasao², Mayuko Nishiwaki¹, Haruhisa Nakano³ (1.Doshisha Univ., 2.R&D Doshisha Univ., 3.NIFS)
4:15 PM - 4:30 PM
- [20p-A310-12] Discharge Characteristics of a Duoplasmatron Type Ion Source with a Reduced Intensity of the Compression Magnetic Field
○Sho Ishitani¹ (1.Doshisha Univ.)
4:30 PM - 4:45 PM

イオン照射 Si 基板上への Au 蒸着による Au ナノワイヤ形成機構

Mechanism of Au nanowire formation by thermal evaporation of Au on a Si substrate irradiated with low-energy ions

京工繊大¹, 量研高崎² ○(D) 水谷 仁美¹, 山本 春也², 高廣 克己¹

Kyoto Inst. Tech.¹, QST Takasaki² ○Hitomi Mizutani¹, Yamamoto Shunya², Katsumi Takahiro¹

E-mail: d1871003@edu.kit.ac.jp

【緒言】我々は、低エネルギーイオンを照射した Si 基板への Au の真空蒸着により、単結晶 Au ナノワイヤ (NW) を成長させる新規 NW 作製法を見出した [1]。Au NW は照射領域内の Si 酸化/非酸化の境界領域のみに成長し、従来の気相成長法よりも低温で NW を作製できる。NW 制御のためには、成長機構の解明が必要である。我々はこれまでに、Au 原子の基板表面拡散による NW 成長モデルを構築した [2]。本講演では、これまでより少量の Au を蒸着した試料を用いて、NW 核生成から NW 形成初期過程までを検討した結果を新たにに加え、NW 形成機構について説明する。

【実験】n 型 Si(100) に対して 5-keV Ar⁺照射 (照射量: $1.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$) を行った後、基板を一旦大気下に取り出し、真空蒸着装置に移動させ、Au を蒸着した。Au 蒸着は、高真空下 ($\sim 5 \times 10^{-6} \text{ Pa}$)、基板温度 300°Cで行った。設定膜厚 5 nm まで蒸着した後、300°C、45 分間のアニールを行う試料と行わない試料を作製した。走査型電子顕微鏡 (SEM) および透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて Au 蒸着試料を観察した。

【結果・考察】Figure 1 に、Ar⁺照射後、Au を蒸着した試料の断面 TEM 像を示す。アニールを行わない試料では、Au 粒子が基板と連続する構造が多数見られたが、アニールした試料では、Au 粒子が基板と不連続な構造のみ観察できた。蒸着中に基板内部に拡散した Au 原子が、アニールにより放出されると考えられる。また、Au 粒子直下の基板の制限視野電子回折図形から、アニールした試料でのみ、Si の再結晶化が確認できた。以上の結果とこれまでの研究結果から、結晶 Si の非晶質化、非晶質 Si 表面の酸化、Au シリサイド形成、Au 種結晶の形成、非晶質 Si の再結晶化を経る NW 形成機構を明らかにすることができた。講演では、本研究を総括する予定である。

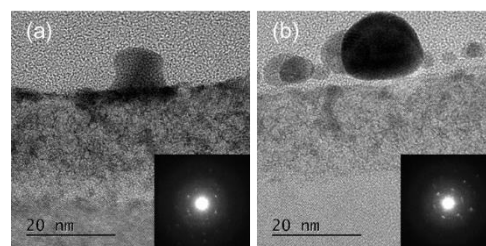


Figure 1. Cross-sectional TEM images of Au deposited Si substrate without (a) and with (b) annealing at 300°C for 45 min after Au deposition.

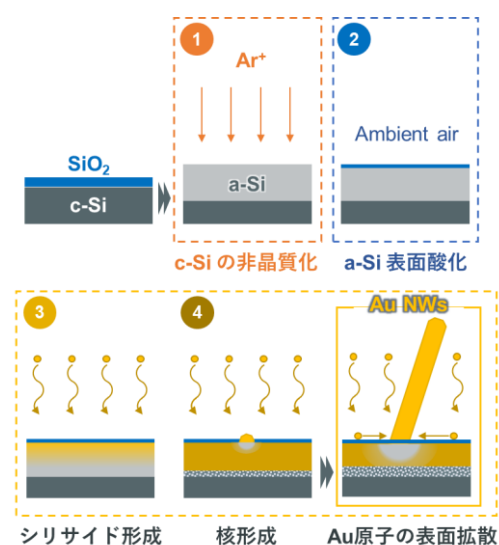


Figure 2. Schematic diagrams for Au NW growth mechanism.

[1] H. Mizutani et al. Appl. Surf. Sci. 604 (2022) 154616.

[2] 水谷ら, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会, 16a-D519-4, 2023 年 3 月 16 日.

プロトン性イオン液体を用いたクラスター負イオンビーム生成とその照射効果

Negative-cluster ion beam production using protic ionic liquid and its bombardment effects

産総研 分析計測標準研究部門 ◦藤原 幸雄

AIST Research Institute for Measurement and Analytical Instrumentation, ◦Yukio Fujiwara

E-mail: yukio-fujiwara@aist.go.jp

負イオンビームは、絶縁性材料に照射してもチャージアップがほとんど生じないという利点を持ち、正イオンビームよりも有用性は高いものの¹⁾、正イオンビームと比べて生成が難しい。例えば、集束性に優れる液体金属イオン源は、正イオンビームは生成できるが、負イオンビームは生成できない。基本的に液体金属イオン源は、液体金属で尖った針を濡らし、針の先端から電界によって液体金属の正イオンを放出するものである。イオン液体イオン源は、液体金属の代わりにイオン液体を用いることで、正負両極性のイオンビームを生成できる。

我々は、プロトン性イオン液体を用いたイオンビーム生成技術の研究開発を進めている。図1に、イオンビーム放出部の概念図を示す。尖った針をプロトン性イオン液体で濡らし、その先端に電界を印加することでイオン液体を構成するイオンを放出させることができる。

本研究では、プロトン性イオン液体として、ジエチルメチルアンモニウム トリフルオロメタンサルホネート

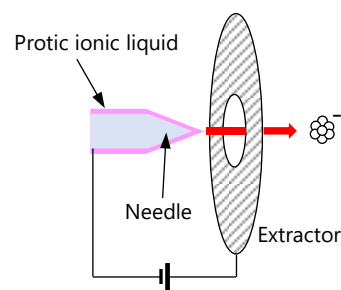


Fig.1 Schematic of the needle emitter.

(diethylmethylammonium trifluoromethanesulfonate: [dema][TfO], $C_6H_{14}F_3NO_3S$, 237 u)を用いた。先端を尖らせたホウケイ酸ガラス棒をこのイオン液体で濡らし、エミッターとして使用した。エミッターに正電圧を印加すると正イオンが放出され、負電圧を印加すると負イオンが放出される。

実験の結果、正イオンモードならびに負イオンモードにおいて、安定なビームが生成された。負イオンビームは、イオン液体分子がいくつか凝集したクラスターイオンによって構成され、主に2種類のクラスター負イオン ($[TfO]^-$ ([dema][TfO] : m/z 386 および $[TfO]^-$ ([dema][TfO])₂ : m/z 623) が含有されることがわかった。この負イオンビームを電氣的に絶縁されたステンレス製の平板に照射してチャージアップ電圧を測定したところ、高々+1V程度しか帯電しない事を確認できた。²⁾ さらに、このクラスター負イオンビーム照射を用いて TOF-SIMS 実験を行った。分析試料としては、絶縁物 (テフロン) や有機物 (アルギニンやポリエチレングリコール PEG300) を用いた。その結果、電子シャワー等の電荷中和が無しの条件でも、絶縁物や絶縁条件にある有機物を問題なく分析できることを実証できた。³⁾

[1] 石川順三, 応用物理 **65**, p587 (1996). [2] Y. Fujiwara and N. Saito, J. Vac. Sci. Technol. A **39**, 063218 (2021). [3] Y. Fujiwara and N. Saito, J. Vac. Sci. Technol. A **40**, 053203 (2022).

LIB 負極表面の大気圧 MeV-SIMS 測定 (III)

MeV-SIMS Measurement of Negative Electrode Surface of Lithium Ion Battery at Atmospheric Pressure (III)

京大院工¹, °瀬木利夫¹, 松尾二郎¹Graduate School of Engineering, Kyoto Univ.¹, °Toshio Seki¹ and Jiro Matsuo¹

E-mail: seki.toshio.7r@kyoto-u.ac.jp

リチウムイオン電池(LIB)は、高エネルギー密度かつ長寿命という特徴を持ち、スマートフォンや電気自動車などの電源として広く使用されるようになり、さらなる大容量化・長寿命化が求められている。LIBの充放電中の電極と電解液の界面についての理解は、寿命の長いLIBを開発するために必要である。しかし、その界面での反応は未だによくわかっておらず、分析手法の確立が期待されている。LIB性能の劣化の大きな要因としてはリチウムイオンが電極と電解質の間を通る際の反応障壁の存在が確認されており、電極表面に形成されるSEI (Solid Electrolyte Interphase) が関係していると考えられている。SEIは有機物と無機物の混合物として形成されるため、その分析には元素情報だけでなく有機分子の化学情報の測定も必要と考えられ、SIMSによる質量分析は有効であると考えられる。二次イオン質量分析法(SIMS)は感度の高さや原理上すべての質量を分析可能であるという特徴をもつが、通常のSIMSはkeV領域のエネルギーを持つ一次イオンを用いることから高真空下での測定が必要不可欠であり、高真空下で不安定な揮発性液体試料や水を含んだ状態の生体試料を評価することが困難であった。そのため、MeV領域のエネルギーを持つ高速重イオンを用いたMeV-SIMSの研究開発を行い、一次イオン入射ノズルや二次イオン引出ノズルにオリフィス径が100 μm 程度の精密ノズルを使用することにより、試料室に大気圧までHe導入した状態でも分析室やビームラインの真空度の悪化を抑制し、大気圧下におけるSIMS測定が可能なMeV-SIMS装置を構築した[1]。これによりLIBに用いる揮発性有機液体である電解液の大気圧下SIMS測定に成功している[2]。

今回は、エチレンカーボネート(EC)とジエチルカーボネート(DEC)の混合液(EC:DEC = 3:7)にLiPF₆を1 M溶かした電解液を用いてLIBを作成し、充放電を1~20サイクル行った後、その負極のみを取り外した試料表面をHe大気圧下でMeV-SIMSによる測定を行った。充放電無しの強度で規格化したいくつかの質量のシグナル強度の充放電回数依存性を図1

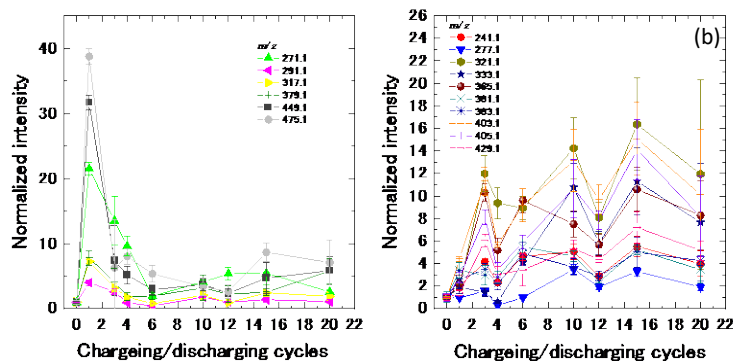


Fig. 1 Peak intensities as a function of the number of charging / discharging cycles at various mass.

に示す。図1より、充放電1回程度で最大値を取るシグナル(a)と充放電3回程度まで増大し、その後強度が飽和するシグナル(b)が存在することが分かった。図1(a)の物質は初回充放電時に負極活物質と電解液溶媒が接触した際に反応した生成物であると考えられるが、負極表面に残存し続けるのはそのうちの一部分のみであるのに対し、図1(b)の物質は反応生成物であり電極表面に残存し続けており、表面に不動態層として残存するSEIの構成分子を示していると考えられる。

[1] M. Kusakari *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B 34, 03H111 (2016).

[2] T. Seki *et al.*, Nucl. Inst. and Meth. B 479, 229 (2020).

Ar および水クラスターイオンビーム照射によるベンジルピリジニウム分子の脱離イオン化過程

Desorption/ionization processes of benzyl pyridinium molecules by Ar and water cluster ion beam irradiation

兵庫県大工¹, °盛谷 浩右¹, (M1)徳 泰成¹, 乾 徳夫¹

Univ. of Hyogo¹, °Kousuke Moritani¹, Taisei Toku¹, Norio Inui¹

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

近年、二次イオン質量分析(SIMS)は有機材料にその応用範囲を拡げており、特に有機材料や生体試料の化学イメージングは、従来にない強力な表面分析手法としてさらなる発展が期待されている。イオンビーム照射によりスパッタされる粒子の大部分は中性粒子であり、検出感度を維持しながらイメージングの空間分解能を高めるためには、より小さなスパッタ領域からより多くのスパッタ粒子、特に非解離分子をイオン化する必要がある。そのため、化学的効果を援用してスパッタ粒子の二次イオン化率を向上させることを目的として、水や CO₂、メタノールなどの分子クラスターを SIMS の一次イオンとする研究が行われてきた。[1-5] これらのビームは、分子イオン収率をある程度向上させることに成功しているが、さらなる向上を目指すためには、クラスターイオンビーム照射による分子イオンの脱離イオン化過程を理解する必要がある。しかしこの過程は、スパッタリングとイオン化が混在した複雑な過程であり、そのメカニズムは明らかではない。そこで我々は、これまでクラスターによる有機分子の脱離イオン化過程について調べるため、クラスターサイズを選別しクラスターの 1 原子当たりの平均運動エネルギー (E/n) を制御した Ar クラスターイオンビーム装置を用いて、二次イオン収率の E/n 依存性を測定してきた。本研究では、クラスターサイズを制御した水および Ar クラスターイオンビームを用い、Si 基板上に堆積させたベンジルピリジニウム塩のクラスターサイズに依存して変化する SIMS スペクトルから、有機分子脱離イオン化過程に水クラスターと Ar クラスターが与える影響を比較した。

試料は、1-(4-Nitrobenzyl)Pyridinium chloride(Sigma-Aldrich 社製)を超純水を溶媒として 1.0 g/L に調整し Si 基板上に滴下した後、凍結乾燥した。ビーム加速エネルギーは 5 kV とし、クラスター (Ar_n⁺, (H₂O)_n⁺) のサイズ(n ; 500< n <3000)をランダムに変更しながら SIMS 測定を行った。その結果、水クラスターでは E/n = 2.4 eV 付近で Ar クラスターに比べて分子イオン収率が上がることがわかった。講演では、フラグメントピークのデータも合わせ、水クラスターによるスパッタリングの動的過程について議論する。

[1] S. Rabbani, A. Barber, J.S. Fletcher, N.P. Lockyer, J.C. Vickerman, *Anal. Chem.* 2013, 85, 5,654-8.

[2] K. Moritani, M. Kanai, K. Goto, I. Ihara, N. Inui, K. Mochiji, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, 2013, 415, 300-303.

[3] H. Tian, A. Wucher and N. Winograd, *J. Am. Soc. Mass Spectrom.* 2016, 27, 285-292.

[4] Moritani, K., Nagata, S., Tanaka, A., Goto, K., Inui, N., *Quantum Beam Sci.* 2021, 5, 10.

[5] Lagator, M, Razo, I.B., Royle, T., Lockyer, N.P., *Surf. Interface Anal.*, 2022, 54, 349-355.

クラスターイオンビーム照射による高分子脱離プロセスの検討

Study on polymer desorption process under cluster ion beam bombardment

横浜国大理工¹, 横浜国大院環情², 京大院工³ ○水谷 優里¹, 越下 裕貴², 吉澤 迅風²,

瀬木 利夫³, 松尾 二郎³, 藤井 麻樹子^{1,2}

Yokohama Natl. Univ.^{1,2}, Kyoto Univ.³, °Yuri Mizutani¹, Yuki Koshishita², Hayate Yoshizawa²,

Toshio Seki³, Jiro Matsuo³, Makiko Fujii^{1,2}

E-mail: mizutani-yuri-sb@ynu.jp

1. 緒言

原子および分子の集合体から生成されるクラスターイオンビームは、エネルギーの分配により、等価的に低エネルギーのビームである。これにより、有機分子の低損傷でのスパッタリングが可能となったが、分子の脱離やイオン化等のクラスターイオンビームと固体表面との相互作用は未解明である[1]。これを解明することは、二次イオン質量分析法 (Secondary Ion Mass Spectrometry, SIMS) をはじめとしたイオンビームを用いる分析にとって重要であると考えられる。そこで本研究では、一次イオンビームとして Ar-GCIB を用いた SIMS 測定を行い、着目した高分子の脱離に対して、共存する分子鎖の長短が異なる高分子が与える二次イオン収率への影響を検討した。

2. 実験方法

モデル高分子には平均分子量が 900~1100, 1800~2200, 2700~3300, 7300~9300 のポリエチレングリコール (PEG1000, 2000, 4000, 6000) を用いた。測定には京都大学所有の Ar-GCIB ToF-SIMS 装置を用いた。一次イオンビームにはクラスターサイズが大きく、有機分子をソフトにスパッタリングすることが可能な Ar-GCIB を使用し、質量分析部には直交加速型飛行時間質量分析計 (oa-ToF MS) を使用した。10 keV の Ar₁₀₀₀⁺ をドーズ量が 1.0×10¹⁴ ions/cm² となるまで照射し、正イオンの質量スペクトルを得た。本研究では、PEG1000, 2000, 4000, 6000 を任意の割合で混合し、対象となる PEG 分子の二次イオン収率の変化を調査した。

3. 結果および考察

PEG1000 と PEG6000 を等モル混合した場合の、PEG1000 の存在比を考慮した二次イオン収率および PEG1000 のみの二次イオン収率の比較を Fig.1 (a) に示す。また、PEG1000 を例に二次イオン収率比を求める際の計算式を次に示す。

$$\frac{\text{SIY}_{\text{PEG}(1000+6000)}}{\text{model value}_{\text{PEG1000,6000}}} = \frac{8.01 \dots \times 10^{-7}}{\frac{1}{7}} = \frac{\text{SIY}_{\text{PEG1000}}}{4.60 \dots \times 10^{-6}} \approx 1.2$$

PEG2000, 4000 についても同様に二次イオン収率比を算出し、まとめたものを Fig.1 (b) に示す。Fig.1 (b) より、PEG1000 および PEG2000 では、PEG6000 との混合による大きな二次イオン収率の変化はみられない一方で、PEG4000 では有意に減少した。以上から、PEG の分子鎖が長いほど PEG6000 の添加による二次イオン収率の減少の影響が大きい可能性が示された。

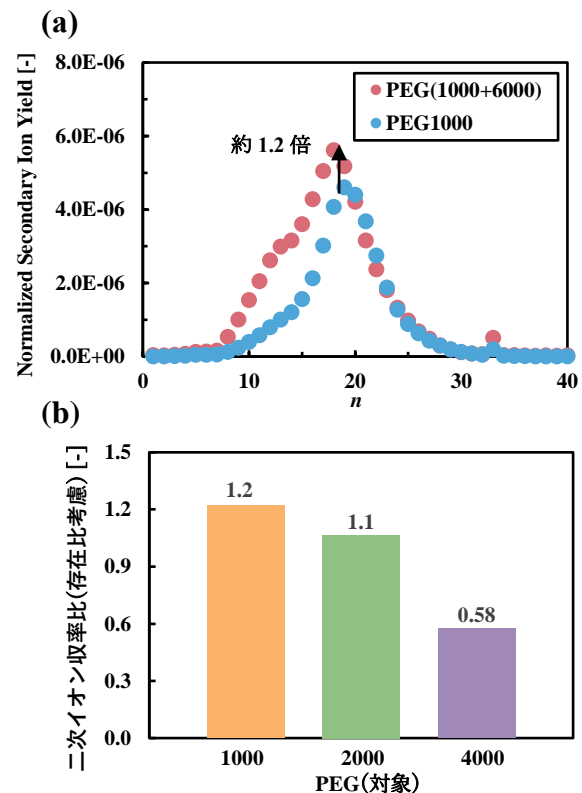


Fig.1 (a) Change in normalized SIY with addition of PEG6000 (b) Normalized SIY ratio of each PEG with addition of PEG6000

参考文献

[1] 松尾二郎, 応用物理, **83**, p.371-372, (2014).

円筒面ガラスチャネルによりガイドされた Ar^{q+} ($q = 7, 8$) イオンビームの運動エネルギー分布

Kinetic energy distributions of Ar^{q+} ($q = 7$ and 8) ion beams guided by cylindrical glass channels

東洋大院理工¹, 東洋大理工² ○(M2)風祭 佑弥¹, (M2)關 誠晃¹, (B)湯浅 茉莉²,
(B)小山 颯一郎², 本橋 健次^{1,2}

Toyo Univ. ○Yuya Kazamatsuri, Tomoaki Seki, Mari Yuasa, Souichiro Oyama and Kenji

Motohashi

E-mail: s36b02200056@toyo.jp

イオンビームガイド効果¹⁾とは入射イオンビーム軸に対して傾斜させた絶縁体毛細管内を低速多価イオンが衝突することなく進行する現象である。この現象ははじめに入射した多価イオンと絶縁体表面原子の電荷交換衝突によって内壁が正に帯電することで、後続の入射多価イオンが斥力を受けることによって生じると考えられており、これを利用したイオンビームの集束・偏向技術への応用研究が始まっている。しかし、先行研究では細いキャピラリーによる集束・偏向に焦点が当てられていたため、内壁の形状や表面状態の影響はよく分かっていない。

本研究では図1のような凹凸型と両凸型の2種類の円筒面ガラスチャネルを用いた。それらに Ar^{q+} イオン($q = 7, 8$)ビーム(エネルギー $2.5 \times q$ [keV])を入射し、チャネルを出射したイオンに対して、検出器に到達するまでの飛行時間と平行平板電極の均一電界による変位を同時に計測した。そして、その飛行時間と変位から出射イオンの価数と運動エネルギーを特定した。

図2は円筒両凸ガラスチャネルを出射した Ar^{7+} イオン(17.5 keV)のチルト角 θ ごとの運動エネルギー分布(KED)である。ただし、網掛け部分は価数の低下したArイオンを実験的に分離できなかったことによる見かけのスペクトルである。図3は偏向角(ϕ)分布である。円筒両凸ガラスチャネルを 3° 傾けることにより、約 -0.17° の偏向が確認された。

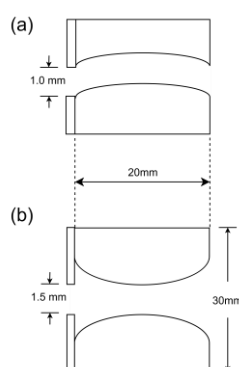


Fig. 1 The concave-convex (a) and the convex-convex (b) types of cylindrical glass channels

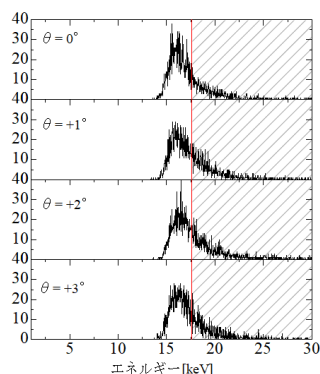


Fig. 2 KEDs of Ar^{7+} ions transmitted through the cylindrical convex-convex glass channel.

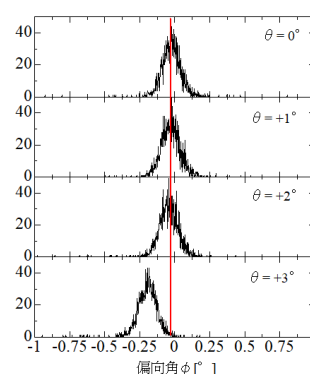


Fig. 3 Deflection angle distributions of Ar^{7+} ions transmitted through the cylindrical convex-convex glass channel

- 1) N.Stolterfoht, J. -H. Bremer, V. Hoffmann, R. Hellhammer, D. Fink, A. Petrov, and B. Sulik. Phys. Rev. Lett. **88**, 133201 (2002).

反応性ガス吸着と O₂-GCIB 照射を用いた金属エッチングの基板冷却効果

Substrate cooling dependence of metal etching using reactive gas adsorption and O₂-GCIB

兵庫県立大工, [○](M2)作田 昂大, 竹内 雅耶, 豊田 紀章

Grad. School of Eng., Univ. of Hyogo, [○]Kohdai Sakuta, Masaya Takeuchi, Noriaki Toyoda

E-mail: ei22k012@guh.u-hyogo.ac.jp

我々のグループでは、半導体材料の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)を検討している。GCIBは1原子あたり数 eV の超低エネルギーであるが、数千個の原子の集団から成るビームであるため表面近傍のみに高密度のエネルギー付与が可能であり、単原子イオンの衝突とは異なる表面励起反応が可能である。これまで本研究グループでは GCIB と酢酸やアセチルアセトン(acac)などの有機分子の吸着を用いて金属エッチングを行ってきた[1]。しかし、これまでの研究では基板温度は室温であり、基板を冷却又は加熱して表面吸着や脱離反応を制御することにより、高い選択比や高アスペクト比のエッチングへの応用を期待している。

本研究では、試料をペルチェ素子上に固定して基板の冷却を行った。また金属膜には Si 基板上に成膜した膜厚 500Å の Pt 又は Co 膜を使用し、反応性吸着ガスとして酢酸を用いた。この金属膜に対し、加速電圧 5 kV、酢酸分圧 3×10^{-3} Pa、イオン照射量 1×10^{16} ions/cm² 又は 5×10^{16} ions/cm² とし、基板温度を常温又は -28°C にして O₂-GCIB 照射を行う。エッチング後、接触式段差計を用いてマスク端でのエッチング深さを測定した。図 1 に上記の条件で照射、測定を行った結果を示す。図より、Pt 及び Co のどちらも酢酸ガスを吸着させていないとき(○、□印)ではエッチングは確認することができなかったが、ガスを吸着させることによってエッチングの増大が見られる。また、基板温度を -28°C に下げることにより Pt (●) 及び Co (■) のどちらもエッチング量が増加していることがわかる。講演では基板の冷却・加熱を行なったときのエッチング効果や、XPS や AFM を用いた表面状態の温度依存性について報告する予定である。

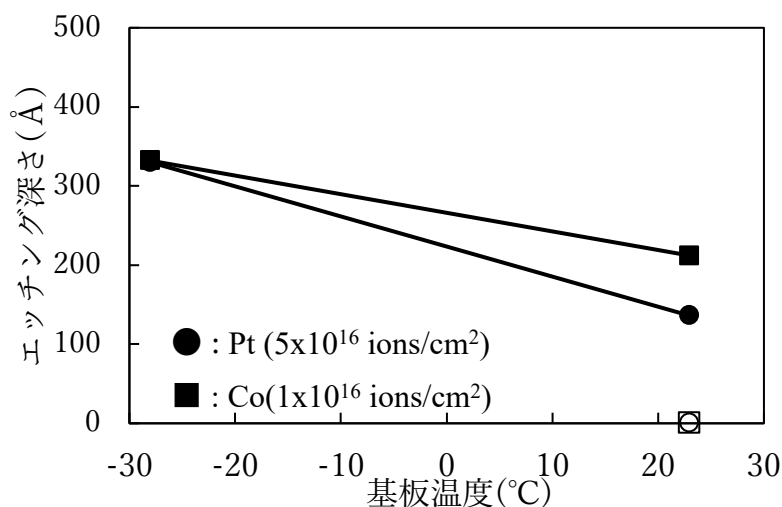


Fig.1. Dependence of etching depth on substrate temperature

[1]豊田紀章, 応用物理,90,239-243(2021)

中性クラスタービーム照射による金属膜へのドライ ALE

Dry Atomic layer Etching of metal films by neutral cluster beam

兵庫県立大工 ○(M2)田中秀幸, 竹内雅耶, 豊田 紀章

Grad. school of Eng., Univ. of Hyogo, ○Hideyuki Tanaka, Masaya Takeuchi, Noriaki Toyoda

E-mail: ei22p015@guh.u-hyogo.ac.jp

近年,デバイスの微細化の進行により,半導体エッチングプロセスにおいても原子レベルでの精度が必要となっている。原子レベルの加工精度で均一にエッチング行う技術として ALE(Atomic Layer Etching)が再注目されている。これまで,本研究室ではガスクラスターイオンビーム(GCIB)と有機酸等の表面吸着を用い,金属膜に対して室温でのハロゲンフリーALE が可能なことを報告してきた[1]。一方,GCIB はイオンビームであるため,高真空,高圧電源などの装置が必要であり,低スループットであるという問題もあった。そこで我々のグループでは,中性クラスタービームによる ALE を検討している。中性クラスタービームは全体で数百 eV のエネルギーを持つ指向性ビームであり,装置構成も単純となるため上記の問題を解決できる可能性がある。これまで, Cu 薄膜に対する O₂ 中性クラスタービーム照射により酸化膜が形成され,溶液を用いた除去過程を利用した ALE が可能であることを報告してきたが[2], 本報告では,中性クラスタービーム照射を用いたドライ環境での ALE を検討した。図 1 に示すように,中性クラスター照射装置を用いて金属膜に対して O₂ 中性クラスタービーム照射を行った後,真空中で有機酸による酸化膜除去を繰り返す ALE を検討した。基板加熱に加えて VUV 光照射を行い表面改質援用効果を検討した。VUV 光照射により強力な酸化剤が形成され,より強い酸化効果を促すことが期待される。

中性クラスタービームを用いた Cu 薄膜に対する ALE 実験として,以下の実験を行った。試料として,まず Cu 表面の酸化膜を酢酸溶液で除去後,[I] O₂ 中性クラスタービームを基板温度 200 度で照射し酸化膜を形成する。[II] 基盤冷却後,酢酸ガスを導入し吸着層を形成する。[III] 酢酸雰囲気ガスを排気する。[IV] 再度 O₂ 中性クラスタービーム照射を基板温度 200 度で行い, Cu 酸化膜除去を行う。これら [I]-[IV] のステップを 1 サイクルとし,複数回サイクルを実行した。また,VUV 光照射の有無によるエッチング効果の差異も検討した。試料はクラスタービームの直接当たる軸上と,残留酸素ガス曝露のみの軸外に置き,中性クラスターの照射効果を調べた。図2に軸上照射と軸外照射での 1 サイクルあたりのエッチング深さ(EPC)を比較した結果を示す。軸外照射の場合に比べて,軸上照射の場合では,約 2.3 倍のエッチングレートが得られた。これは軸上照射において,中性クラスタービームの直接照射による反応促進効果により酸化が促進され,エッチングレートが増加したと考えられる。講演では,反応性ガス吸着と中性クラスタービーム照射を用いた原子層エッチングについて報告する予定である。

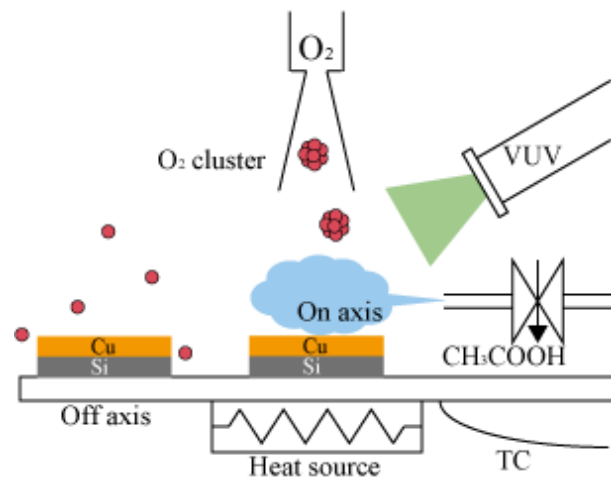


Fig 1. 中性クラスター照射装置の概略図

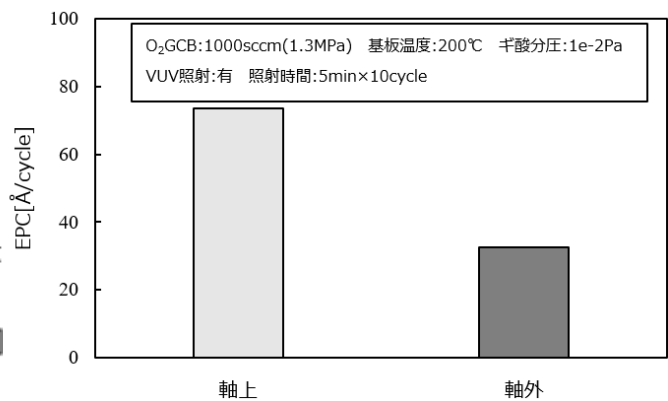


Fig 2. Cu 薄膜へのドライ ALE のエッチングレート

[1] N. Toyoda, Vacuum and Surface Science, 63,12 (2020)

[2] 田中秀幸 応用物理学会 2022 年秋季講演会(22b-C205-11)

GCIB を用いた電子透過窓極薄化による液中試料検出の高感度化

Ultra-thin electron transmission window using GCIB

for high-sensitivity detection of samples in liquid

兵庫県大工¹, 兵庫県大高度研², [○]竹内雅耶¹, 鈴木哲², 豊田紀章¹Grad. school of Eng., Univ. of Hyogo¹, LASTI, University of Hyogo²,[○]Masaya Takeuchi¹, Satoru Suzuki², Noriaki Toyoda¹

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

【序論】 近年、溶液セルを用いることで、XPS および SEM を用いた液体の組成解析や液中試料のマッピングが可能になっている^{1,2}。その溶液セルの最重要パーツは電子を液体へインプットまたは液体からアウトプットするための光電子透過窓であり、先行研究では SiN_x 膜が利用されている。電子の平均自由行程は数 nm であり SiN_x 膜も同程度まで極薄化することでより高感度な検出が可能となるが、同時に溶液封止のために一気圧以上の耐圧性が要求される。我々は、低損傷エッチングが可能なガスクラスタイオンビーム (GCIB) を用いて SiN_x 膜の機械特性を保持したまま原子層レベルで膜厚制御可能なプロセス開発に取り組んできた³。本研究では、上記の技術を用いて SiN_x 膜を極薄化し、GCIB 特有の低損傷照射効果が SiN_x 膜に対して有効か検討する。また実際に溶液セルに液体を封止し、SiN_x 膜極薄化による液中試料検出の高感度の原理実証を行う。

【実験・結果】 先行研究で、我々はアセチルアセトン (Hacac) 雰囲気化で SiN_x 基板に O₂-GCIB を照射することで、反応性エッチングが可能なることを明らかにした³。本実験では、我々は上記のプロセスを用いて、膜厚 5 nm (25 μm 角) の SiN_x メンブレンを極薄化しその耐圧性を評価した。このとき加速電圧は 5 kV であり、SiN_x メンブレンの膜厚は照射量 (エッチング量) を調節することにより制御される。その結果を Fig. 1 に示す。O₂-GCIB で反応性エッチングを行った場合、400 eV Ar⁺ beam でエッチングした場合と比較し、高い耐圧性を示している。我々は GCIB の低損傷照射効果が SiN_x 膜に対しても有効であることを確認した。また我々は、TEM grid を用いて溶液を封止し真空中で保持できる技術を既に開発している。Fig. 2 は SiN_x メンブレン直下に存在する純水とマイクロバブルの SEM・EDX イメージであり、超高真空中で液体を保持しかつ液体の組成をそのまま分析することに成功した。講演では、SiN_x 膜極薄化による液中試料検出の高感度化について、XPS・PEEM・EDX などを用いて議論する。

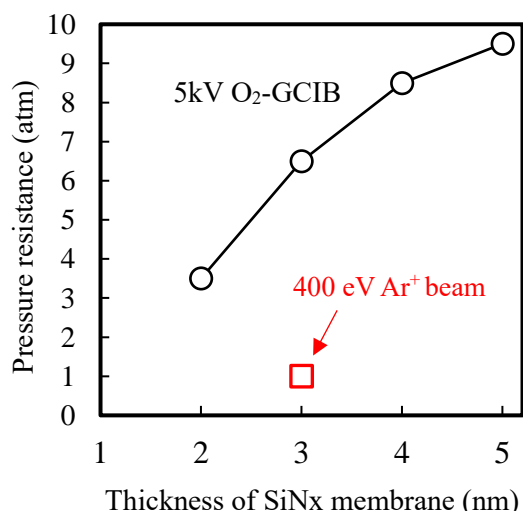


Fig. 1 Pressure resistance of ultra-thin films fabricated by O₂-GCIB and Ar⁺ beam.

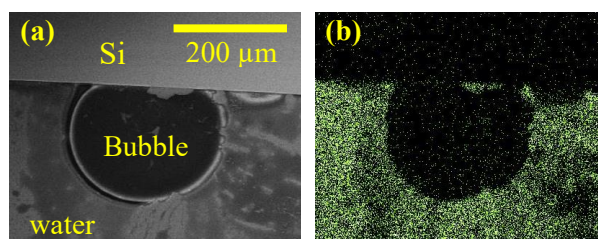


Fig. 2 SEM and EDX (O peak) images of microbubble through SiN_x membrane.

【謝辞】 本研究の一部は、公益財団法人京都科学技術センターの支援により遂行されました。深く感謝申し上げます。

[1] R. Endo *et. al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **114**, (2019).

[2] K. Takahara *et. al.*, *J. Appl. Phys.*, **130**, (2021)

[3] 竹内雅耶 他, 第 70 回 応用物理学会秋季学術講演会 16a-D519-13 (2023)

プラズマ照射した Si 表面近傍の損傷の陽電子消滅法による評価

Evaluation of plasma irradiation damage on Si surfaces by positron annihilation method

滋賀県立大院工¹, 滋賀県立大工², 京大複合研³

○重定 瑠士¹, 一宮 正義², 番 貴彦², 藪内 敦³, 木野村 淳³, 柳澤 淳一²

Grad. Sch. of Univ. of Shiga Pref.¹, Univ. of Shiga Pref.², KURNS, Kyoto Univ.³

○R. Shigesada¹, M. Ichimiya², T. Ban², A. Yabuuchi³, A. Kinomura³, and J. Yanagisawa²

E-mail: oe23rshigesada@ec.usp.ac.jp

【背景と目的】RF プラズマを基板に照射すると、ラジカルによる効果とイオン照射による効果が期待される。SF₆ ガスを用いた RF プラズマで Si 基板をエッチングすると、このイオン照射により基板に損傷が入ることが懸念される。本研究では SF₆ の他に CHF₃ や Ar ガスを用いたプラズマを Si 基板に照射し、基板に導入される損傷について陽電子消滅法により評価した。

【結果と考察】18 mm×18 mm サイズの Si (100) 基板をアセトン、2-プロパノール、超純水で洗浄した後、ガス圧力 30 Pa、電力 5 W の条件で生成した RF プラズマを 30 分間、照射した。

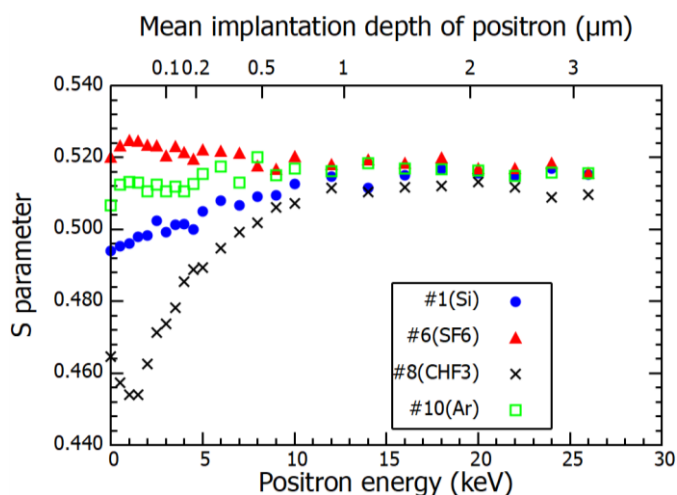


Fig.1. S parameters for plasma treated (#6(SF₆), #8(CHF₃), #10(Ar)) and untreated (#1) Si wafer samples as a function of positron energy.

Fig.1 に陽電子消滅法から得られた各試料についての S パラメータを入射陽電子のエネルギーの関数

として示す。入射エネルギーが 20 keV 程度までの領域では、プラズマ未照射の Si (#1) に対して SF₆ (#6) や Ar (#10) のプラズマを照射した試料の S パラメータは大きくなり、表層部への欠陥の導入が示唆されるが、CHF₃ (#8) の場合には小さくなった。Fig.2 に入射陽電子のエネルギーが 1 keV の場合の陽電子寿命スペクトルを示す。ガスの種類によってスペクトルの傾きが異なり、陽電子の寿命が異なることがわかる。特に CHF₃ プラズマを照射した試料 (#8) では未照射の Si よりも S パラメータは小さかったが、陽電子寿命は SF₆ や Ar プラズマを照射した試料 (#6, #10) よりも大きな値となった。これらの理由について検討したい。

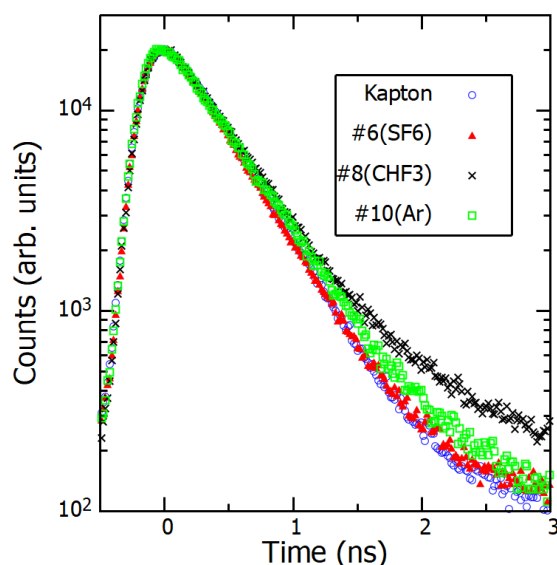


Fig.2. Lifetime spectra of positrons in plasma treated (#6, #8 and #10) Si wafer samples measured at 1 keV. The result for a Kapton film is also shown as a reference.

中性粒子加熱用水素負イオン源の Cs フリー運転

Cesium-free operation of a negative hydrogen ion source for neutral beam heating

同志社院理工¹, 同志社研開², 核融合研³, [○]和田 元¹, 笹尾 真実子², 西脇 万由子¹, 中野 治久³

Graduate School Sci. & Eng. Doshisha Univ.¹, Organization for R&D Promotion, Doshisha Univ.²

National Inst. Fusion Sci.³, [○]Motoi Wada¹, Mamiko Sasao², Mayuko Nishiwaki¹, Haruhisa Nakano³

E-mail: mwada@mail.doshisha.ac.jp

1. はじめに

現在 ITER 用 NBI (Neutral Beam Injection: 中性粒子ビーム入射) の研究開発では, 大型 RF イオン源に Cs を導入して性能評価を行っている. しかしながら, これまでに得られた Cs リサイクルのデータに基づいて考えれば, 許容不可能なレベルの Cs がイオン源に蓄積される可能性がある. 特に ITER 次世代の DEMO 装置の運転では Cs を使わない, 若しくは殆んど Cs を追加注入しないイオン源運転が不可欠と考えられている. そのため Cs フリー運転を目指した負イオン源研究開発が, 現在盛んにおこなわれている. 一つの方法としては体積生成過程により, 水素負イオン比率の高いプラズマを生成する方法, もう一つは Cs 注入以外の手段によって低仕事関数面を形成し, プラズマグリッド (PG) 表面で水素負イオンを表面生成する方法である. 我々は導電性セラミック, C12A7 (12CaO-7Al₂O₃) エレクトライドが低い仕事関数を示すことから, 当該材料からの水素負イオン表面生成について調査してきた. その過程で, エレクトライド材料を水素負イオン生成効率の良いイオン源の PG として使用するためには, エレクトライド PG 表面を適切に前処理する必要があることを見出してきた.

2. エレクトライド材料前処理

エレクトライド材料は大気中に保管していると, 吸湿・酸化などによって表面が変質し, 仕事関数が高い表面層を形成する. そこで, 材料供給時に保護層を付着させた状態で出荷されることがあり, 通常は加熱して表面層を除去し, 清浄な表面が得られた状態で使用する. しかしながら, プラズマ中に不純物が混在している場合などは一定の運転時間後, 材料表面に汚染層が形成され, やはり仕事関数が増加して負イオン生成能が低下する. 最近のプラズマ表面素過程実験において, 重水素プラズマを照射することにより, エレクトライド表面の仕事関数を低下させ得ることが判明しつつある.

軽元素によるスパッタリング率は通常小さいが, 重水素に対して図1に示す ACAT (Atomic Collision in Amorphous Target) による計算結果のように, 15 eV 以上の入射エネルギーで, 軽元素で構成されるエレクトライドをスパッタリング洗浄可能であることが分かる. これはエネルギーが 15 eV 程度以上の重水素イオンの存在するプラズマに曝されるとき, エレクトライド中の分子構造が失われる可能性を示唆する.

逆に RF イオン源では比較的プラズマポテンシャルが高いことから, 壁から放出されるイオン源壁面材料がエレクトライド PG に付着する可能性がある. 事実, エレクトライド評価実験において, 表面からモリブデンなどの重金属が検出される材料に対しては高い仕事関数, 低い負イオン生成能が計測される場合があった. 現在, 長時間運転において発生する可能性のある, イオン源プラズマ中の不純物リサイクリングについて調査中である.

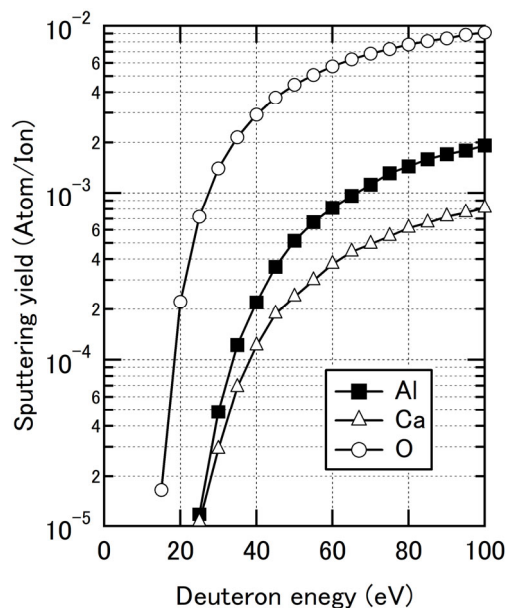


Fig. 1. Sputtering yields of O, Ca and O from electride material due to deuteron incidence.

弱圧縮磁場型デュオプラズマトロン型イオン源の放電特性

Discharge Characteristics of a Duoplasmatron Type Ion Source with a Reduced Intensity of the Compression Magnetic Field

同志社大院理工¹, [○](M1)石谷 翔, 宮本 直樹, 和田 元

Grad. School Sci. Eng. Doshisha Univ.¹, [○]Sho Ishitani¹, Naoki Miyamoto¹, Motoi Wada¹

E-mail: ctwj0318@mail4.doshisha.ac.jp

1. 研究背景

半導体イオン注入層への汚染元素の固定化技術として、炭化水素イオンの浅層注入によるゲッタリングウェハプロセスが提案されるなど、汎用イオン源からの分子イオン生成がプロセス技術に採用される可能性がある。そこで、高い電流密度の得られるデュオプラズマトロン型イオン源で炭化水素分子イオンを生成し、高分子炭化水素イオン生成に適した条件を調査中である。今回、磁気回路が分子イオン生成に与える影響を調べるため、ホローカソードを用いた弱磁場強度冷陰極デュオプラズマトロンイオン源を設計製作し、放電特性調査及び各種イオンの引出特性評価から原子、分子イオン生成過程を調査した。

2. 実験装置

使用したホローカソード冷陰極型デュオプラズマトロン型イオン源（以下ホローカソード型イオン源と略記）の概略図を Fig.1 に示す。イオン源放電室は電子放出部（カソード）、中間電極、プラズマ中への炭素供給源となる炭素製陽極オリフィス板で構成される。カソードフランジと中間電極ではデルリンを用いて絶縁している。中間電極は内径 25mm、外径 50mm、長さ 40mm の円筒状、上底の直径 10mm、下底の直径 26mm、傾斜 45° の円錐台状の磁性材料により圧縮磁場を形成する。プラズマ圧縮磁場はフェライト磁石により形成し、最大でも磁場強度は 2 kG 未満と予想される。

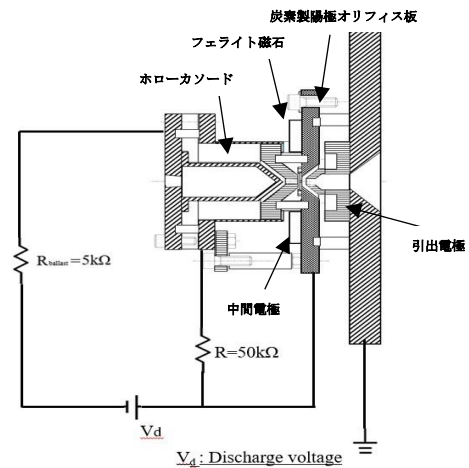


Fig.1. An electrical circuit diagram for discharge testing of a cold cathode ion source with a hollow cathode.

3. 実験結果

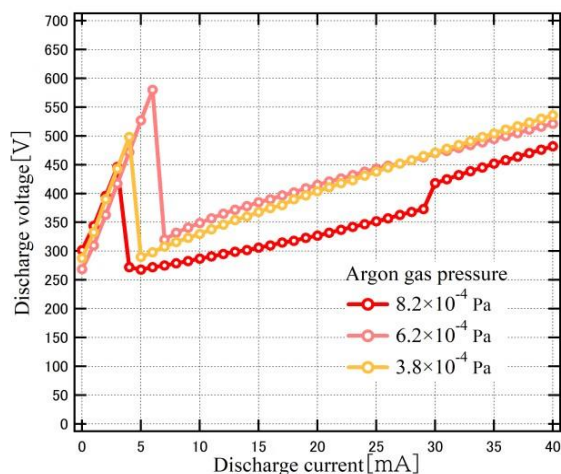


Fig.2. Discharge characteristics of the reduced compression filed intensity duoplasmatron ion source.

ホローカソード冷陰極型デュオプラズマトロンイオン源で得られた、Ar 放電に対する電流-電圧特性を Fig.2 に示す。放電電流を増加させていく過程で、放電電流が 5 mA を超える付近で電圧が急峻に低下する特性が見られた。また、この電流値は運転圧力の増大とともに低下した。この放電特性に見られる遷移現象は、放電電流増加に伴うシース長の減少、すなわち高密度プラズマが中間電極陰極側から陽極側にまで到達し、この部分の電圧降下が減少したために現れたものと考えられる。同様の現象は Ne においても観測され、この放電の遷移過程が分子イオン生成に与える影響を調査予定である。

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.2] Code-sharing Session of 3.2 & 4.4

[20a-A308-1~6] CS.2 Code-sharing Session of 3.2 & 4.4

Hiroyuki Suzuki(Gunma Univ.)

Wed. Sep 20, 2023 9:30 AM - 11:30 AM A308 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

- ▲[20a-A308-1] [JSAP-Optica Joint Symposia 2023 Invited Talk] Snapshot Compressive Imaging
○Xin Yuan¹ (1.Westlake University)
9:30 AM - 10:00 AM
- ▼[20a-A308-2] Computer-generated Holography for Double-sided Image Reproduction
○(B)Ryutaro Suda¹, Yohei Nishizaki², Makoto Naruse¹, Ryoichi Horisaki¹ (1.UTokyo, 2.Osaka Research Inst.)
10:00 AM - 10:15 AM
- ▲[20a-A308-3] Optical design and retinal image quality of trifocal intraocular lens
○(M1)YEN-TING WU¹, Chia-Yu Chang¹, Jia-Han Li¹ (1.National Taiwan Univ)
10:15 AM - 10:30 AM
- ▲[20a-A308-4] Intelligent identification of pollutant types and concentrations based on image processing and optical technology.
○(M2C)Tsung-Ta Chan¹, Chih-Chung Wang¹, Hung-Wei Hsu¹, Chao-Ching Ho², Feng-Sheng Kao³, Jen-You Chu³, Jia-Han Li¹ (1.National Taiwan Univ., 2.National Taipei Univ. of Technology, 3.Industrial Technology Research Inst.)
10:30 AM - 10:45 AM
- ▲[20a-A308-5] Processing RF signals using low-power Brillouin nonlinearities
Reena Parihar¹, Piyush Raj¹, K Girish², ○Amol Choudhary¹ (1.IIT Delhi, 2.NIT Trichy)
10:45 AM - 11:00 AM
- ▲[20a-A308-6] [JSAP-Optica Joint Symposia 2023 Invited Talk] Omnidirectional 3D shape measurement using Gabor digital holography and deep neural network
○Nobukazu Yoshikawa¹ (1.Tottori Univ.)
11:00 AM - 11:30 AM

Snapshot Compressive Imaging

Xin Yuan Westlake University

E-mail: xyuan@westlake.edu.cn

Capturing high-dimensional (HD) data is a long-term challenge in imaging and related fields. Snapshot compressive imaging (SCI) uses a 2D detector to capture HD (>3D) data in a snapshot measurement. Via novel optical designs, the 2D detector samples the HD data in a compressive manner; following this, algorithms are employed to reconstruct the desired HD data cube. SCI has been used in hyperspectral imaging, video, holography, tomography, focal depth imaging, polarization imaging, microscopy, and so on. Although the hardware has been investigated for more than a decade, the theoretical guarantees have only recently been derived.

Inspired by deep learning, various deep neural networks have also been developed to reconstruct the HD data cube in spectral SCI and video SCI. This talk reviews recent advances in SCI hardware, theory, and algorithms, including both optimization-based and deep learning-based algorithms. Diverse applications and the outlook for SCI will also be discussed.

Computer-generated Holography for Double-sided Image Reproduction

Ryutaro Suda¹, Yohei Nishizaki², Makoto Naruse¹, and Ryoichi Horisaki¹

¹ The University of Tokyo, ² Osaka Research Institute of Industrial Science and Technology
E-mail: ryutaro.suda@gmail.com

Computer-generated holography (CGH) is a technique to calculate interference patterns that reproduce arbitrary optical fields. Various CGH applications have been proposed, such as next-generation displays¹⁻³). In this study, we present CGH for double-sided image reproduction with a single hologram toward omnidirectional displays for virtual/augmented reality⁴).

The optical setup for double-sided CGH is shown in Fig. 1. Light from a spatial light modulator (SLM) passes through a half mirror (HM) and reproduces a left-side image. The HM partially reflects the light from the SLM, and the reflected light is modulated again by the SLM. The twice-modulated light reproduces a right-side image. We solve an inverse problem of combining single-modulated and double-modulated image reproductions based on gradient descent to synthesize the hologram displayed on the SLM.

In the experimental demonstration, we used a transmissive SLM (LC2012, HOLOEYE) configured as an amplitude modulation hologram and diode-pumped solid-state laser (DJ532-40, Thorlabs) for an illumination light source. The transmittance of the HM was set as 0.3 to equalize the light intensities on the left and right sides. The left- and right-side reproduced images were captured by monochrome image sensors (DMK38UX253, The Imaging Source).

The results of the numerical and experimental demonstrations are shown in Fig. 2. We set images in Figs. 2(a) and 2(d) as the left- and right-side targets for the demonstrations. One hundred amplitude holograms were synthesized with different random initializations, and their reproduced images were accumulated to suppress speckle noise. The numerically reproduced left- and right-side images are shown in Figs. 2(b) and 2(e), where their peak signal-to-noise ratios (PSNRs) were 27.4 dB and 27.9 dB, respectively. The optically reproduced left- and right-side images are shown in Figs. 2(c) and 2(f). Although these results verified our double-sided CGH, a model mismatch, including a low fill factor of the SLM, may cause the gap between the numerical and optical reproduction results.

We presented and demonstrated double-sided image reproduction by a single hologram. This study provides new insights into holographic displays. Our display method will be a promising tool for visual interfaces of future virtual/augmented reality, such as omnidirectional displays and digital signage with compact optical forms.

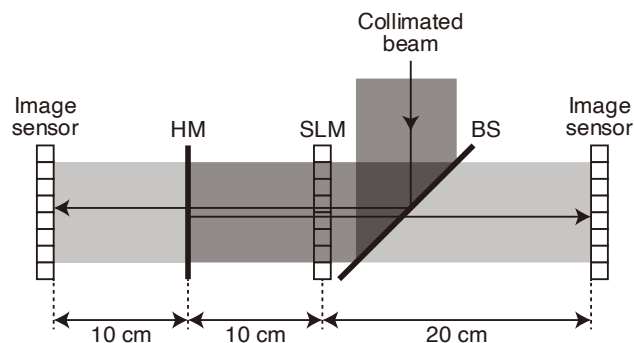


Fig. 1. Optical setup for double-sided image reproduction by CGH. SLM: spatial light modulator in an amplitude modulation configuration. HM: half mirror. BS: beam splitter.

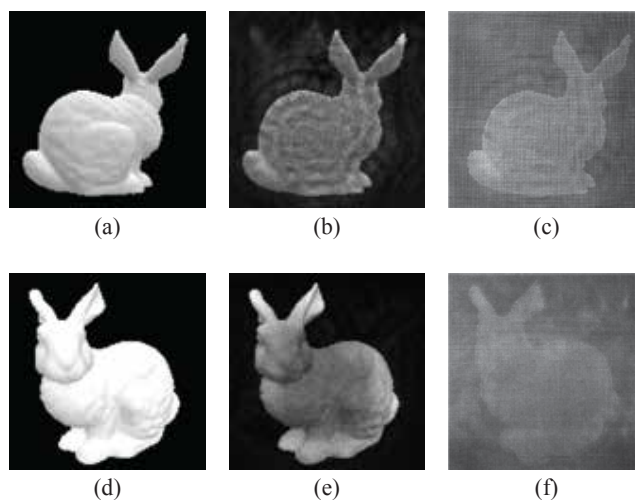


Fig. 2. Demonstration of double-sided CGH. Left-side images of (a) target, (b) numerical reproduction, and (c) optical reproduction. Right-side images of (d) target, (e) numerical reproduction, and (f) optical reproduction.

References

- [1] C. Chang, K. Bang, G. Wetzstein, B. Lee, and L. Gao, *Optica* **7**, 1563 (2020).
- [2] J.-H. Park, *J. Inf. Disp.* **18**, 1 (2017).
- [3] D. Pi, J. Liu, and Y. Wang, *Light. Sci. & Appl.* **11**, 231 (2022).
- [4] R. Suda, Y. Nishizaki, M. Naruse, and R. Horisaki *Opt. Lett.* **48**, 2102 (2023).

Optical design and retinal image quality of trifocal intraocular lens

Chia-Yu Chang, Yen-Ting Wu, and Jia-Han Li*

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

E-mail: r10525027@ntu.edu.tw, r11525148@ntu.edu.tw, * : jiahan@ntu.edu.tw

1. Introduction

The lens in the human eye is responsible for adjusting different diopters, allowing people to receive images at different distances from light sources. The ciliary muscle in the human eye can control the thickness of the lens to change the required diopter for clear vision. However, as the ciliary muscle ages, its ability to adjust the lens's focal length becomes limited. Cataracts, which are caused by the degradation of the lens, may require cataract surgery to implant new intraocular lens and prevent disruption to daily life [1].

According to a 2022 report by the World Health Organization (WHO), at least 94 million people worldwide have vision impairment or blindness that can be corrected through cataract surgery [2]. Additionally, it is projected that the number of blind individuals worldwide will double by 2050. Therefore, the demand for worldwide intraocular lens implantation is expected to continue increasing in the future in order to effectively prevent and treat eye-related diseases.

2. Methodology and results

This study refers to the Liou and Brennan human eye model [3], which is an optical system widely used to approximate the characteristics of a real and healthy human eye. The human eye model is established in optical simulation software, and the imaging effects of light sources at different distances are simulated. In this study, three different light source distances were set to confirm the imaging effects of three different focal lengths. The front and back curved surface structures and material parameters of the lens were defined. The human eye model used in this study is taken from [4].

The back surface incorporates a diffraction structure, such as the formula, and through this diffraction structure, a diopter of 1.5D and 20D of BASE LENS are added to achieve the trifocal effect, the front surface is optimized by setting variables and conditions through the optical simulation software.

In terms of materials, the refractive index and dispersion are key parameters used to describe the optical properties of intraocular lens materials. The crystal material used in this study is a hydrogel material. After measuring the refractive index of the material within the wavelength range from 380 nm to 780 nm, the refractive index and dispersion values were added to the optical simulation software for optimization.

In the section on retinal imaging, the MTF value in our case is compared with other works in [5] under the conditions of a 3.0 mm pupil size and 50 cycles per mm spatial frequency as shown in Figure 1.

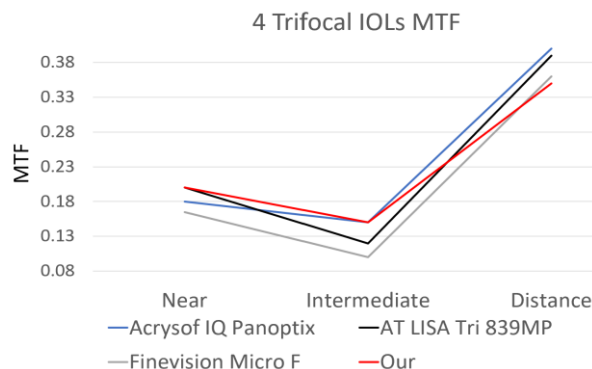


Figure 1. MTF values under the conditions of a 3.0 mm pupil size and 50 cycles per mm spatial frequency.

3. Conclusions

In this study, we aimed to study intraocular lens with improved visual acuity by designing and simulating trifocal intraocular lens. Our focus was on enhancing near vision for patients. Through optical design, we developed lenses that can effectively focus on objects at different distances onto the retina. Furthermore, we used software simulations to ensure better imaging quality for both near and intermediate distances. This research provides a new option for patients with cataracts, offering the ability to simultaneously achieve vision clarity at different distances.

Acknowledgements

We are grateful to the National Center for High-Performance Computing, Taiwan, for providing us with the computation time and using its facilities. This research was funded by National Science and Technology Council of Taiwan under grant number 110-2221-E-002-149 - MY2. We like to thank Professor Chi-An Dai at National Taiwan University for the hydrogel material preparation.

References

- [1] Liu, Yu-Chi, et al. "Cataracts." *The Lancet* 390.10094 (2017): 600-612.
- [2] World Health Organization. "Report of the 2030 targets on effective coverage of eye care." *Report of the 2030 targets on effective coverage of eye care*. 2022.
- [3] Liou, Hwey-Lan, and Noel A. Brennan. "Anatomically accurate, finite model eye for optical modeling." *JOSA A* 14.8 (1997): 1684-1695.
- [4] Vega, Fidel, et al. "Optical design and performance of a trifocal sinusoidal diffractive intraocular lens." *Biomedical Optics Express* 12.6 (2021): 3338-3351.
- [5] Carson, Daniel, et al. "Optical bench performance of 3 trifocal intraocular lenses." *Journal of Cataract & Refractive Surgery* 42.9 (2016): 1361-1367.

Intelligent identification of pollutant types and concentrations based on image processing and optical technology

Tsung-Ta Chan¹, Chih-Chung Wang¹, Hung-Wei Hsu¹, Chao-Ching Ho², Feng-Sheng Kao³, Jen-You Chu³, and Jia-Han Li^{1,*}

¹ Department of Engineering Science and Ocean Engineering, National Taiwan University, Taipei 106319, Taiwan

² Graduate Institute of Manufacturing Technology and Department of Mechanical Engineering, National Taipei University of Technology, Taipei 10608, Taiwan

³ Material and Chemical Research Laboratories, Industrial Technology Research Institute, Hsinchu 310401, Taiwan

E-mail: r10525030@ntu.edu.tw, * : jiahan@ntu.edu.tw

1. Introduction

With the rapid development of human civilization, the world is facing serious water pollution issues, leading to significant economic losses. Improving the efficiency of wastewater treatment plants (WWTPs) and effectively treating sewage has become a pressing priority.

One critical issue in WWTPs is the formation of persistent foam, as it can cause a range of operational problems. [1]. Therefore, effective chemical dosing for these foams is necessary. To deal with these challenges, we require a reliable foam identification technique. Image processing plays an important role in microbial detection, tracking, monitoring, feature extraction, modeling, and analysis. Therefore, utilizing image processing techniques for foam identification and analysis is paramount. [2]

2. Methodology and results

Our research aims to develop an efficient foam identification technique by combining image processing and optical instruments [3]. This method allows for non-contact detection of foam concentration and types in water, enabling automatic monitoring and analysis.

We selected samples that are prone to foaming in wastewater, such as Bovine Serum Albumin (BSA) representing biological proteins and a Sodium dodecylbenzenesulfonate (SDBS) representing surfactant. Our experiment setup for foam characteristics is shown in Fig1. In the optical part, time-of-flight instrument was used to detect the stacked height of foam at the liquid surface. In the image part, the foam features were captured using a camera, and image processing techniques such as grayscale conversion, sharpening, contrast enhancement, and median filtering were applied to analyze the captured foam images. Finally, binary processing and foam area selection were performed.

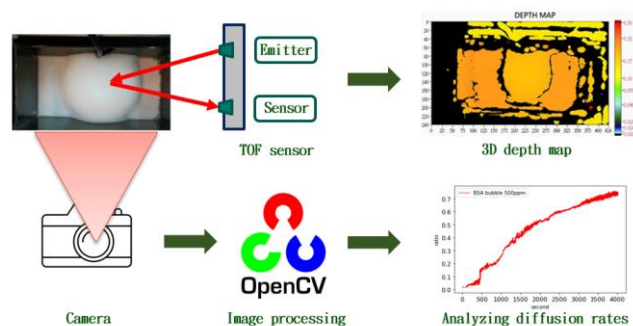


Fig. 1. Illustration of our experiment setup.

Next, we prepared high-concentration (250, 500 ppm) and low-concentration (50, 100 ppm) aqueous solutions using BSA and SDBS. The results showed that BSA foam is more easily to stacking than SDBS foam, while SDBS foam tends to diffuse more easily than BSA foam. This is because proteins tend to adsorb at the interface and interact with electrostatic, hydrophobic, and covalent bonds, resulting in the formation of multilayered foam and slowing down the diffusion rate. Surfactant foams have hydrophilic and hydrophobic ends, with the hydrophilic ends present in water and the hydrophobic ends extending into the air. Due to the characteristics of the hydrophilic ends, surfactant foams exhibit faster diffusion rates in water.

3. Conclusions

In this study, we propose an advanced method for classifying and identifying the concentration and types of foam using optical technology and image recognition. In the optical aspect, we measure the stacking height of BSA and SDBS ranging from low to high concentrations. In the image aspect, we achieve real-time selection and measurement diffuse foam area. This provides valuable information to wastewater treatment plant operators, enabling them to take timely measures to effectively deal with persistent foam and improve system operational efficiency.

Acknowledgements

This research was funded by Industrial Technology Research Institute under grant number 111HZE1100F and National Science and Technology Council of Taiwan.

References

- [1] Collivignarelli, Maria Cristina, et al. "Foams in wastewater treatment plants: from causes to control methods." *Applied Sciences* 10.8 (2020): 2716.
- [2] Kulwa, Frank, et al. "A state-of-the-art survey for microorganism image segmentation methods and future potential." *IEEE Access* 7 (2019): 100243-100269.
- [3] He, Yu, and Shengyong Chen. "Recent advances in 3D data acquisition and processing by time-of-flight camera." *IEEE Access* 7 (2019): 12495-12510.

Processing RF signals using low-power Brillouin nonlinearities

Reena Parihar¹, Piyush Raj¹, K. Girish², and Amol Choudhary^{1,*}

¹Ultrafast Optical Communications and High-Performance Integrated Photonics (UFO-CHIP),

Department of Electrical Engineering, Indian Institute of Technology (IIT) Delhi, India

²National Institute of Technology, Tiruchirappalli, India

E-mail: achoudhary@ee.iitd.ac.in

Processing of RF signals using photonics is becoming increasingly important owing to 5G and up-coming 6G applications. One important functionality that is desirable for the high-capacity and flexible communication systems is fast tunable and reconfigurable RF filtering. There are several optical technologies that achieve low-resolution filters which are only relevant for coarse signal processing (>500 MHz). Stimulated Brillouin scattering (SBS) enables Megahertz resolutions and can bridge high-resolution and coarse resolution signal processing [1]. However, bandwidth tailoring of Brillouin responses requires large optical powers to generate multiple pumps and thus makes the system very power-inefficient [2-4].

In this paper, we discuss a technique that primarily harnesses the phase response of SBS rather than the amplitude response and thus requires only ~ 20 mW of optical power to achieve bandpass filters with reconfigurable bandwidth from 30 MHz-700 MHz with a selectivity of >20 dB. Furthermore, central frequency tuning >20 GHz is demonstrated. The filter passband possesses a very flat and linear phase response, which results in a net zero group delay in the passband. This is experimentally verified by propagating an RF pulse in the passband as shown in Fig. 1(a). Traditional Brillouin-based filters have a drawback due to the excess noise added in the passband. In this topology, no additional noise is added to the signal in the passband thus highlighting a major advance compared to traditional SBS devices. Finally, switching from bandpass to bandstop filters is also achieved with suppression of >15 dB and stopband bandwidths in excess of 1000 MHz as shown in Fig.1(b).

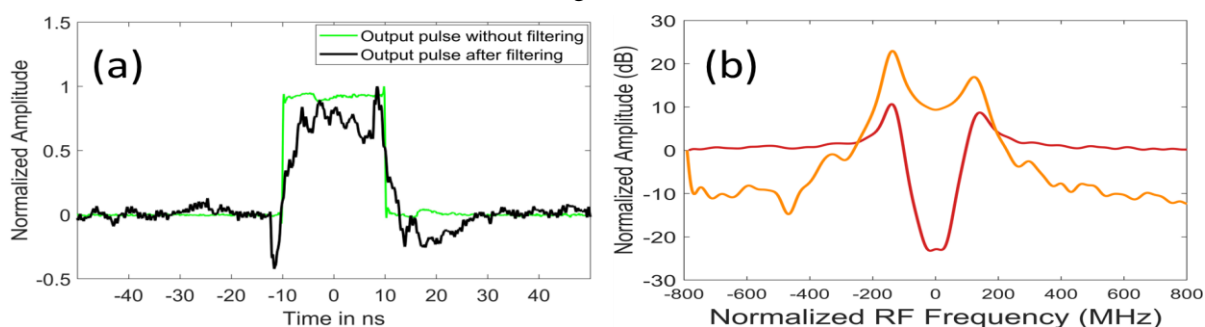


Fig 1. a. Pulse propagation through the filter with 0-delay, b. switching from a bandstop to bandpass filters.

References

1. R. Parihar et al., J. Lightwave Technol. 39, 977-991, 2021.
2. W. Wei, L. Yi, Y. Jaouën, and W. Hu, Opt. Express 22, 23249-23260, 2014.
3. A. Choudhary et al., J. Lightwave Technol. 35, 846-854, 2017.
4. I. Aryanfar et al., Opt. Express 24, 14995, 2016.

Omnidirectional 3D shape measurement using Gabor digital holography and deep neural network

Nobukazu Yoshikawa

Graduate School of Engineering, Tottori University
E-mail: nyoshi@tottori-u.ac.jp

1. Introduction

Omnidirectional 3D measurement method has been extensively studied in various fields, including human body measurement, industrial product inspection, and 3D data creation for 3D printers. We have developed an omnidirectional 3D measurement method using Gabor digital holography (DH) and deep learning [1-3]. In this method, contour images of an object are obtained from reconstructed images of Gabor holograms captured from all directions. The 3D shape in all directions is restored by combining the contour information from all directions. Since DH is a lens-less imaging technique, accurate 3D shape can be obtained without distortion caused by lens aberrations.

2. Method

The omnidirectional 3D measurement system using Gabor DH is shown in Fig. 1. In this study, we developed an edge-enhanced reconstruction method to obtain a clear contour image from a Gabor hologram. This method uses only the off-axis interference regions that exist away from the center of the hologram while disabling the shadow and in-line interference regions behind the object. Hence, clear contour image can be reconstructed without distortion caused by unwanted components. We found that disabling the interference region up to the first maximum yields an edge-enhanced reconstructed image with sharp peaks at the exact location of the contour.

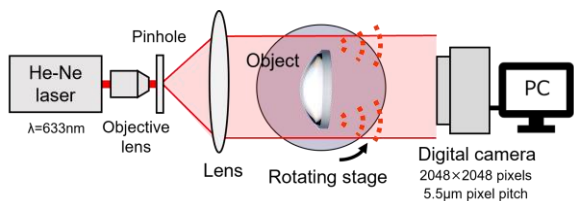


Fig.1. Experimental system.

To obtain contour information from DH, digital refocusing is required. However, this process requires a long computation time. Therefore, we developed a contour reconstruction method based on deep learning. A deep neural network (DNN) was trained using Gabor holograms created from objects with various shapes and contour information obtained by the edge-enhanced reconstruction method. We adopted the U-Net architecture [4].

3D shape can be restored by applying the rigid body transformation or the visual volume intersection method to the contour information.

3. Experiments

Experiments were performed with an aspheric lens (Edmund Optics, #83-577). The object was placed on a rotating stage, rotated every 5 degrees, and 72 holograms were captured from all directions. Typical Gabor hologram is shown in Fig. 3(a). The reconstructed contour images by diffraction calculation and DNN are shown in Figs. 3(b) and 3(c), respectively. The contour image without outliers or missing points can be clearly reconstructed by the DNN. The computation time to obtain a contour image of an object in all directions was 40 seconds, constituting a substantial reduction of 1/300 in comparison to the conventional method.

The restored 3D shape of the aspheric lens and its cross section are shown in Fig. 3 when the voxel size is set to 5.5 mm. The RMSE of the aspheric shape was 3.8 μm compared to the ideal shape calculated from the aspheric lens specifications. This indicates that correct 3D shapes can be obtained by DNN and Gabor holograms.

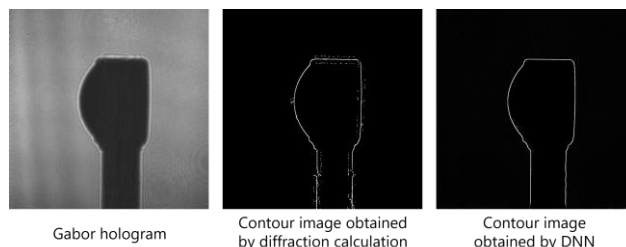


Fig.2. Gabor hologram and reconstructed contour images.

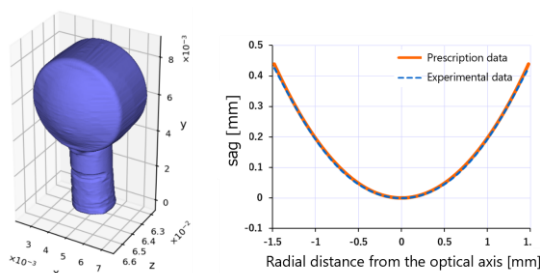


Fig.3. Restored 3D shape of aspheric lens and its cross section.

References

- [1] Y. Someya, T. Mizumura, N. Yoshikawa, The 24th Congress of the International Commission for Optics (2017) P4-30.
- [2] N. Yoshikawa, T. Miyake, Opt. Commun. **529** (2023) 129080.
- [3] T. Miyake and N. Yoshikawa, Optics & Photonics International Congress 2022 (2022) IPp-02.
- [4] O. Ronneberger, P. Fischer, T. Brox, LNCS, **9351** (2015) 234.

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.2] Code-sharing Session of 3.2 & 4.4

[20p-A308-1 ~ 20] CS.2 Code-sharing Session of 3.2 & 4.4

Ryoichi Horisaki(The Univ. of Tokyo), Kenji Harada(Kitami Inst. of Tech.), Shuji Taue(Kochi Univ. of Tech.)

Wed. Sep 20, 2023 1:00 PM - 7:00 PM A308 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

- [20p-A308-1] [Young Scientist Presentation Award Speech] Volumetric display with femtosecond-laser-driven light scattering voxels
○Kota Kumagai¹, Yoshio Hayasaki¹ (1.Utsunomiya Univ.)
1:00 PM - 1:15 PM
- [20p-A308-2] Estimations of drawing area and light emission of a voxel in gas-excitation type volumetric display
○Tatsuki Mori¹, Yoshio Hayasaki¹ (1.Utsunomiya Univ. CORE)
1:15 PM - 1:30 PM
- [20p-A308-3] Fabrication of Volume Holographic Combiner for Autostereoscopic Viewing without Glasses
○Masaru Onezawa¹, Yusuke Sando³, Toyohiko Yatagai², Daisuke Barada^{1,2}
(1.Opt.Eng,Utsunomiya Univ., 2.CORE, Utsunomiya Univ., 3.ORIST)
1:30 PM - 1:45 PM
- [20p-A308-4] Full-color electro-holography using MEMS devices and fiber-coupled RGB laser
○Takafumi Kinosada¹, Shuhei Yoshida¹ (1.Kindai Univ.)
1:45 PM - 2:00 PM
- [20p-A308-5] Relationship between luminance and reflectance of aerial images formed by Aerial imaging by retro-reflection with non-parallel two beam splitters
○Kohei Kishinami¹, Shiro Suyama¹, Hirotsugu Yamamoto¹ (1.Utsunomiya Univ.)
2:00 PM - 2:15 PM
- [20p-A308-6] Measuring of Curvature of a Large Acrylic Beam Splitter in AIRR
○Mayu Adachi¹, Masaki Yasugi^{1,2}, Shiro Suyama¹, Hirotsugu Yamamoto¹
(1.Utsunomiya Univ., 2.Fukui Prefectural Univ.)
2:15 PM - 2:30 PM
- [20p-A308-7] Structured polarization-spot array generation with axially symmetric polarization input
○Taiki Suzaki¹, Yusuke Ogura¹, Jun Tanida¹ (1.Osaka Univ.)
2:30 PM - 2:45 PM
- [20p-A308-8] Effects of Trigger Size on Data Poisoning Attack in Imaging through Scattering Media by Deep Learning
○Daiki Shingu¹, Wataru Watanabe¹ (1.Ritsumeikan Univ.)
2:45 PM - 3:00 PM
- ▲[20p-A308-9] [JSAP-Optica Joint Symposia 2023 Invited Talk] Randomness assisted imaging

○Rakesh Kumar Singh¹ (1.Indian Institute of Technology (Banaras Hindu University))

3:15 PM - 3:45 PM

▲[20p-A308-10] Looking through a dynamic scatterer

○(D)SOURAV CHANDRA¹, TUSHAR SARKAR¹, RAJ KUMAR², BHARGAB DAS², RAKESH KUMAR SINGH¹ (1.IIT (BHU), 2.CSIR-CSIO)

3:45 PM - 4:00 PM

▲[20p-A308-11] Hermite-Gaussian Superposition Modes for Speckle-Guided Demultiplexing

(M2) Trishita Das¹, (M2) Manas Ranjan Pandit¹, ○(D)Purnesh Singh Badavath¹, () Vijay Kumar¹ (1.NIT Warangal)

4:00 PM - 4:15 PM

▲[20p-A308-12] [JSAP-Optica Joint Symposia 2023 Invited Talk] Privacy-Preserving Human Behavior Estimation with Sparse Sensor Measurements

○Mariko Isogawa¹ (1.Keio Univ.)

4:15 PM - 4:45 PM

△[20p-A308-13] High-Speed Ghost Imaging by Wavelength Multiplexing

○Kenta Takanashi¹, Hiroya Kano¹, Hiroshi Ohno¹ (1.TOSHIBA)

5:00 PM - 5:15 PM

[20p-A308-14] Compressed sensing-based highly sensitive hyperspectral camera

○Chikai Hosokawa¹, Motoki Yako¹, Yoshikazu Yamaoka¹, Takayuki Kiyohara¹, Atsushi Ishikawa¹ (1.PanasonicHD)

5:15 PM - 5:30 PM

[20p-A308-15] Single-shot compressive hyperspectral imaging using diffracted lights by Ronchi grating

○Ryohei Takahashi¹, Yusuke Saita², Takanori Nomura² (1.Grad.Sch.Sys.Wakayama Univ., 2.Fac.Sys.Wakayama Univ.)

5:30 PM - 5:45 PM

△[20p-A308-16] Temporal Ghost Imaging Enabled by One-Time Readout

○Ryota Keyaki¹, Susumu Fukatsu¹ (1.The Univ. of Tokyo)

5:45 PM - 6:00 PM

△[20p-A308-17] Sampling method in spectrally encoded single-fiber imaging

○(M1C)Hisayoshi Nonome¹, Yusuke Oshima¹, Takashi Katagiri¹ (1.Univ. of Toyama)

6:00 PM - 6:15 PM

[20p-A308-18] Verification of reconstruction with deep learning for wavefront sensing based on single pixel detection

○(M1)Naohiro Kobayashi¹, Kouichi Nitta¹, Osamu Matoba¹ (1.Kobe Univ.)

6:15 PM - 6:30 PM

△[20p-A308-19] A Phase Retrieval Algorithm for Zernike Phase-Contrast Microscopy

○(M2)Rikimaru Kurata¹, Keiichiro Toda², Genki Ishigane², Makoto Naruse¹, Takuro Ideguchi², Ryoichi Horisaki¹ (1.The Univ. of Tokyo (IST), 2.The Univ. of Tokyo (Science))

6:30 PM - 6:45 PM

△[20p-A308-20] Rapidly convergent unitary processor using few-layer-redundant multi-plane light conversion

○Yoshitaka Taguchi¹, Yunzhuo Wang², Ryota Tanomura¹, Takuo Tanemura¹, Yasuyuki Ozeki¹ (1.Univ. Tokyo, 2.Preferred Networks Inc.)

6:45 PM - 7:00 PM

フェムト秒レーザー励起光散乱型ボクセルを用いた ボリュメトリックディスプレイ

Volumetric display with femtosecond-laser-driven light scattering voxels

宇都宮大オプティクス, °熊谷 幸汰, 早崎 芳夫

Utsunomiya Univ., °Kota Kumagai¹, Yoshio Hayasaki¹

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

ボリュメトリックディスプレイは、体積的画素（ボクセル）の描画により映像を実空間に直接表示するため、人の奥行き知覚を一挙に満たす 3D 映像提示を可能にする。これらのディスプレイは、これまでにボクセル自ら光を放つ発光型と、照明光の導入により可視化される光散乱型に大別される実装方法が提案されてきた。とくに光散乱型は、照明光の色変化のみでボクセルに色付けできるため、映像のカラー化に優位性がある。光散乱型ボクセルの形成は、散乱物体をレーザー[1]や音波[2]で補足する方式と、レーザー励起により生成する方式[3, 4]がある。生成する方式は、ユーザや物体との接触によりボクセルが消滅しないことに加え、高速走査できるため、人の目にとってのリアルタイムで観察できる堅牢な体積映像を実現する可能性がある。

本研究では、自由空間カラーボリュメトリックディスプレイの実現に向けて、フェムト秒レーザー励起空中ボクセルの散乱光を評価することで、光散乱型としての利用可能性を検討する。物体補足を伴わない空気中への光散乱型ボクセルの生成は、ユーザや物体との接触でも破壊されない堅牢なカラー体積映像を実現するディスプレイ技術として期待できる。

Figure 1(a)は、第二次高調波発生により波長 1030 nm から 515 nm に変換された緑色フェムト秒レーザーの集光照射を用いて得られた、空中ボクセルの発光色を示す。ボクセルは、入射レーザーの偏光方向と水平をなす方向を 0 degree とし、異なる角度からカメラを用いて観察された。ボクセル色は、観察方向が入射偏光と垂直をなす方向に近づく従い緑色に変化した。Figure 1(b)にそれぞれのスペクトル分布を示す。励起パルスの波長に光強度の増加が観察されることと、光散乱が偏光依存性を有することから、これは、ボクセルに入射パルス自身が散乱することで得られた色変化と推察される。

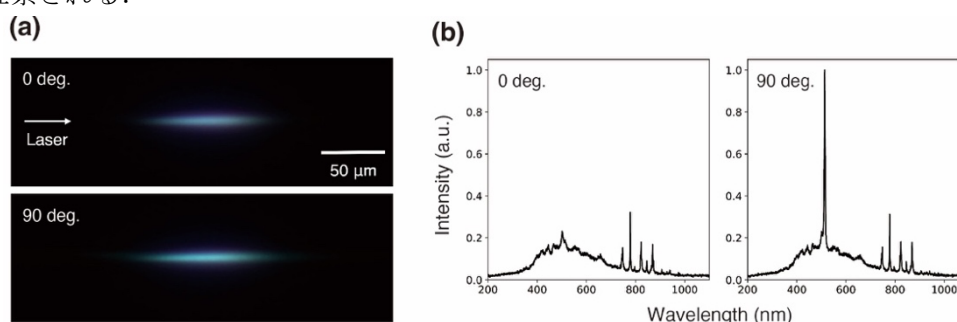


Fig. 1(a) Femtosecond-laser-driven aerial voxels observed from 0 and 90 degrees and (b) their spectra.

本研究は、科研費（21K17777）、内閣府 SIP プログラム「光・量子を活用した Society 5.0 実用化技術」（管理法人：量研(又は QST)）によって実施された。

参考文献

- [1] D. E. Smalley *et al.*, *Nature* **553**, 486 (2018).
- [2] R. Hirayama *et al.*, *Nature* **573**, 320 (2019).
- [3] K. Kumagai *et al.*, *Optica* **4**, 298 (2017).
- [4] K. Kumagai *et al.*, *Opt. Exp.* **28**, 33911 (2020).

気体励起型体積的ディスプレイの描画範囲とボクセルの発光特性の評価

Estimations of drawing area and light emission of a voxel

in gas-excitation type volumetric display

宇都宮大オプティクス[○](M2)森 建基, 早崎 芳夫

Utsunomiya Univ. CORE, (M2)Tatsuki Mori, Yoshio Hayasaki

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

1. はじめに

体積的ディスプレイは、物理空間に3次元的に画素(ボクセル)を生成することで、人が直接的に観察できる体積的映像を呈示する。気体に集光照射したパルスレーザーで励起し、その発光をボクセルとする、気体励起型体積的ディスプレイが提案された[1]。これは、ユーザーと映像とのシームレスな関係を利用したタッチインタラクション[2]や、可視領域を網羅するプラズマの発光色を選択的に抽出することでボクセルの着色[3]を達成した。

本研究では、体積的ディスプレイにおいて、光学系を再構築して、センチメートルオーダーの映像サイズを実現した時の、その映像描画範囲とボクセルの発光特性を評価する。空気中へのフェムト秒レーザーの集光照射により生成される発光について、集光位置を変化させながらその光強度や発光サイズについて評価した。

2. 実験結果

Figure 1は体積的ディスプレイの実験システムを示す。それは、主に、中心波長1030nm、繰り返し周波数10kHz、パルス幅155fsのフェムト秒レーザー、横方向の集光位置を調整するガルバノスキャナ、光軸方向の集光位置を調整する可変焦点レンズ、F θ レンズによって構成された。フェムト秒レーザーの集光照射によって生成された発光は、CMOSイメージセンサーで観測された。

Figure 2は、体積的ディスプレイの描画範囲を示す。黒線で囲まれた部分は集光位置の操作範囲で、青色のプロットはボクセルの生成が確認された位置である。ボクセルが生成されているかどうかの判断は、実験者が肉眼で見えるか見えないかで判断した。デバイスの操作範囲のほとんどの領域でボクセルが生成されているが、 $z = 4.2$ cm付近の角の位置ではボクセルの生成が確認されなかった。これは、可変焦点レンズが凹レンズとして作用し、ガルバノスキャナに入射されるレーザーの一部がミラーより大きくなってしまったり、NA低下によるものである。

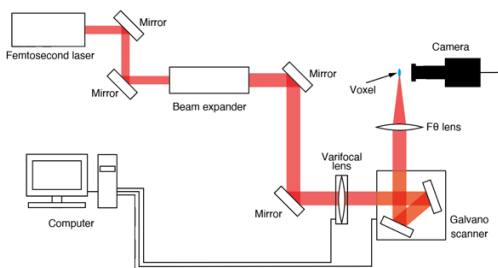


Fig. 1 実験システム.

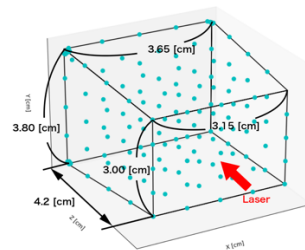


Fig. 2 ディスプレイシステムの描画範囲.

参考文献

- 1) H. Kimura, T. Uchiyama, and H. Yoshikawa, "Laser produced 3D display in the air," In ACM SIGGRAPH 2006 Emerging Technologies (SIGGRAPH'06), Article 20 (2006).
- 2) Y. Ochiai, K. Kumagai, *et al.* "Fairy lights in femtoseconds: Aerial and volumetric graphics rendered by focused femtosecond laser combined with computational holographic fields," ACM Trans. Graph. **35**, 1–14 (2016).
- 3) K. Kumagai, S. Miura, and Y. Hayasaki, "Colour volumetric display based on holographic-laser-excited graphics using drawing space separation," Sci. Rep. **11**, 22728 (2021).

裸眼画像立体視を目的とした体積ホログラフィックコンバイナの作製

Fabrication of Volume Holographic Combiner for Autostereoscopic Viewing without Glasses

宇大光工学¹, 宇大 CORE², 大阪産技研³ ○小根澤 優¹, 山東 悠介³, 谷田貝 豊彦², 茨田 大輔^{1,2}

Opt. Eng., Utsunomiya Univ.¹, CORE, Utsunomiya Univ.², ORIST³

○Masaru Onezawa¹, Yusuke Sando³, Toyohiko Yatagai², Daisuke Barada^{1,2}

E-mail: mc226523@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1 はじめに

近年メタバース等の仮想空間利用が注目されているが、仮想空間を実世界に表示する技術としてARがある。ARで立体視を得るためには、通常スマートグラス等のヘッドマウント型のディスプレイが使われる。しかしヘッドマウント型のディスプレイは、重量や3D酔いによる長時間利用の負担が懸念され、また同時閲覧者の数だけデバイスが必要となる。本研究では、将来的に裸眼で複数人が同時閲覧可能なARディスプレイへの応用を目的として、体積ホログラフィックコンバイナの作製を検討する。

2 体積ホログラフィックコンバイナ

裸眼立体視を得る手法として、パララックスバリア方式が良く知られているが、この方式は2枚以上の画像を短冊状に切って交互に並べ、パララックスバリアによって両眼に別の画像を見せる方式である。それに対して本研究で検討する方法は、体積ホログラムによる回折方向の角度選択性を利用し両眼に別の画像を見せる方式である。複数枚の画像を短冊状に切る必要はなく、原理的には多くの画像を選択的に回折可能である。本研究では、手始めにFig.1のように横に2枚並べただけの2視点画像を用いる。

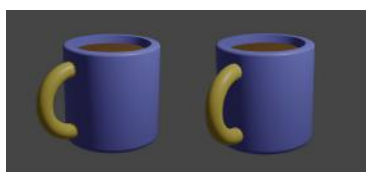


Fig. 1: Stereogram

この左側の画像を右目の方向に、右側の画像を左目の方向に回折させることによって、コンバイナの手前に浮かぶ形での立体視を得ることができる。

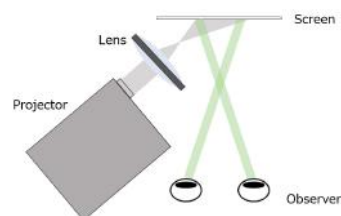


Fig. 2: Optical setup

3 実験と考察

体積ホログラフィックコンバイナは、フォトポリマーに2重露光した体積ホログラムを形成させることによって作製した。2重露光は、左右の目の方向に適切に回折するような回折格子を形成させるように行った。プロジェクターからFig.1の画像を投影したところ、視点の移動によってFig.3のような画像が独立に回折されることを確認した。二つの回折像を両眼で同時に見ると立体視が得られる。



Fig. 3: Experimental result

今後は3枚以上の画像を同時に回折させることによって複数位置から立体視が得られるようにすることを検討する。

MEMS デバイスとファイバー結合 RGB レーザーを用いたフルカラー電子ホログラフィの検討

Full-color electro-holography using MEMS devices and fiber-coupled RGB laser

近畿大学大学院総合理工学研究科 ○(M1)紀之定 嵩文, 吉田 周平

Kindai Univ., Graduate School of Science and Engineering ○Takafumi Kinosada, Shuhei Yoshida

E-mail: 2333340405p@kindai.ac.jp

1. 序論

電子ホログラフィとは、光の干渉を利用し電子的に記録、再生を行う技術である。電子ホログラフィとはコンピュータで計算での計算によってホログラムを作成し、光学系で3次元像を投影する技術である[1]。

本研究では、MEMS デバイスとファイバー結合 RGB レーザーを用いたコンパクトかつ高速なフルカラー電子ホログラフィの再生システムについて検討する。

2. 原理

本研究ではポリゴン法によってホログラムを合成する。フーリエ変換光学系での再生を考慮しホログラムに対し逆フーリエ変換を行うことにより、焦点面で結像するホログラムを作成する。このとき、回折角の波長分散の補正のためにホログラムに平面波を重畳する。フーリエ変換のシフト則により、焦点面で再生像と不要光を分離することが可能となる。(図1)

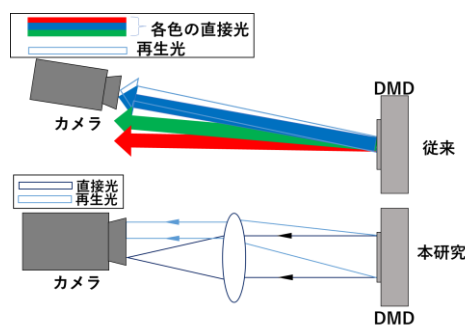
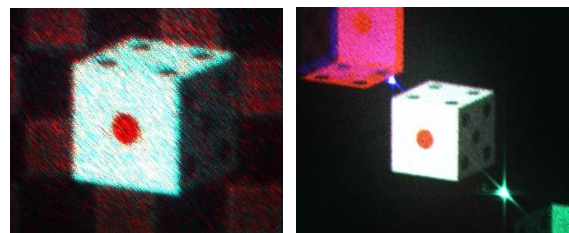


図1 フレネルホログラムと提案手法の再生系

3. 結果および考察

フレネルホログラムおよび提案手法の再生像を図2に示す。



(a) フレネルホログラム (b) 提案手法

図2 再生像

実験結果を比較すると、フレネルホログラムでは再生像全体に青色の0次光が映りこんでいるが、提案手法では0次光と共役光が分離できている。提案方法によりシンプルな光学系で不要光の除去が可能となることが分かる。

4. 結論

本研究では、MEMS デバイスとファイバー結合 RGB レーザーを用いたフルカラー電子ホログラフィの再生システムについて検討し、実験により提案手法が有効であることを確認した。

参考文献

[1] 伊藤智義, 下馬場朋禄: “ホログラフィ入門 コンピュータを利用した3次元映像・3次元計測”, 講談社, pp. 1-99 (2017)

2枚のビームプリッターを非平行に配置した AIRR 光学系により形成される空中像の輝度と反射率との関係

Relationship between luminance and reflectance of aerial images formed by Aerial imaging by retro-reflection with non-parallel two beam splitters

宇都宮大学 °岸波康平, 陶山 史朗, 山本 裕紹

Utsunomiya Univ. °Kohei Kishinami, Shiro Suyama, Hirotsugu Yamamoto

E-mail: hirotsugu@yamamotolab.science

1. はじめに

2枚の非平行に配置したハーフミラーで構成された光学系に再帰反射による空中結像技術(AIRR) [1]を導入することで, 計4方向の空中像を形成する手法が提案されている[2]. しかし, 正面に形成される空中像については, 2枚のハーフミラーの反射率および透過率が, 正面の空中像の輝度に与える影響については分かっていない. 正面の空中像は, 光学系内部の複数回の反射光により形成されるため, ハーフミラーの反射率を高くすることにより輝度が向上することが考えられる.

本研究の目的は, 2枚のビームプリッターを非平行に配置した光学系において, 2枚のビームプリッターの反射率および透過率と, 形成される空中像の輝度との関係について明らかにすることである. 反射率と透過率の異なる条件において, LED光源を用いて形成される正面の2つの空中像の輝度計測を行った.

2. 原理

Fig. 1に4方向に空中像を形成する光学系の原理および実験に用いた光学系を示す. 再帰反射材とビームプリッターを四角形に配置し, 光源を2枚のビームプリッターに向けて配置する. 光源からの光は2枚のビームプリッターで2回反射され, 再帰反射材に入射する. この再帰反射光は, 2回目に反射したビームプリッターで反射光と透過光に分けられる. このうちの透過光が正面の(a), (b)の位置に空中像を形成する. 結像位置は片側のビームプリッターの角度によりずれるため, 正面に2分割された空中像が形成される. したがって, 計4方向に空中像の形成が可能となる.

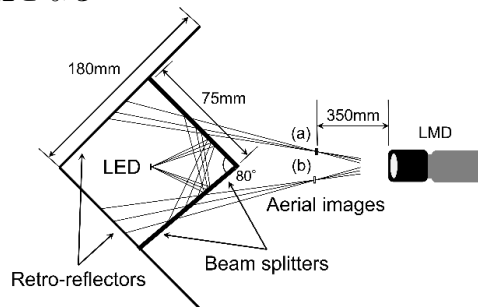


Fig. 1 Experimental setup for measurement of the luminance of the frontal aerial image.

3. 実験

図1に示した(a), (b)の位置に形成される空中像の輝度の理論値 L_T は, 光源の輝度 L_S , 再帰反射材の再帰反射率 R_R , ビームプリッターの反射率 R_B , 透過率 T_B を用いて以下の式(1)で表される.

$$L_T = \frac{L_S R_R R_B^2 T_B}{2} \quad (1)$$

また, 各条件における実測値および理論値を表1に示す. 理論値は, 光源の輝度を $9,000\text{cd/mm}^2$, プリズムのタイプの再帰反射材の再帰反射率を0.5としてそれぞれ算出した. 実験では, 反射率が0.3かつ透過率が0.7, 反射率と透過率がともに0.5, 反射率が0.7かつ透過率が0.3のビームプリッターを2枚ずつ使用し, 輝度計(ProMetric Y-29)を用いて空中像(a)の結像位置に合わせて測定を行った, 実験結果より, 正面の空中像の輝度は反射率が0.7, 透過率が0.3のときに最も高かった. また, 算出した理論値からも同様に, ビームプリッターの反射率が高いほど空中像の輝度も高くなることが分かった. 反射率0.7の場合の(a)の位置の空中像の輝度は, 反射率0.3の空中像の輝度の2.7倍であることが分かった.

Table 1 Relationship between reflectance and transmittance of the beam splitter and the frontal aerial images and theoretical values.

reflectance	transmittance	luminance of the left image (b) (100cd/m ²)	luminance of the right image (a) (100cd/m ²)	Theoretical value (100cd/m ²)
0.3	0.7	1.3	1.4	1.4
0.5	0.5	2.4	2.6	2.8
0.7	0.3	3.4	3.6	3.3

4. おわりに

複数方向に空中像を形成する光学系において, ビームプリッターの反射率が高いほど正面の空中像の輝度が向上することが分かった.

本研究の一部は JSPS 科研費 20H05702, 19H04155 の助成を受けたものである.

参考文献

- [1] H. Yamamoto, *et al.*, *Opt. Express* **22**, 26919 (2014).
 [2] K. Kishinami, *et al.*, LDC2023, p. LDC11-03 (2023).

AIRR における大型のビームスプリッターの湾曲の計測

Measuring of Curvature of a Large Acrylic Beam Splitter in AIRR

宇都宮大学¹, 福井県立大学² ◯安達 真由¹, 八杉 公基^{1,2}, 陶山 史朗¹, 山本 裕紹¹

Utsunomiya Univ.¹, Fukui Prefectural Univ.² ◯Mayu Adachi¹, Masaki Yasugi^{1,2},

Shiro Suyama¹, Hirotsugu Yamamoto¹

E-mail: hirotsugu@yamamotolab.science

1. はじめに

近年, VR を用いた体験型アトラクションの実装が増えており, 等身大で没入感のある展示やアトラクションは人々の注目を集めるものになっている. 我々は再帰反射による空中結像技術である AIRR (aerial imaging by retro-reflection)[1]を用いた没入型等身大空中ディスプレイデバイスを提案している. 空中インターフェースとしてインタラクティブなコンテンツの表示を行うため, 本デバイスには光学式モーションキャプチャシステム OptiTrack (NaturalPoint, Inc.)が採用されている[2]. 本デバイスでは, ビームスプリッターに大型の亚克力板を用いているため, その自重により亚克力板の変形が生じている[3]. そのため, 本デバイスで生成される空中像に歪みが生じるが, 亚克力板の立体的な歪みの程度を一般的な計測ツールで把握することは難しい.

本研究の目的はビームスプリッターの歪みを円筒に近似することである. ビームスプリッターの側面の形状を計測し, 形状を円筒に近似することで空中像の集光を計算することができる.

2. 原理

AIRR を用いた大型空中ディスプレイに設置している亚克力板を Fig. 1 に示す. この亚克力板の歪みを測定する.

AIRR による空中ディスプレイは光源から出た光が亚克力板を透過し, 再帰反射シートで再帰反射された後, 亚克力板で反射され空中像を形成する. 大型空中ディスプレイはビームスプリッターの湾曲により光源から出る光が垂直方向と水平方向の2方向にずれながら集光する非点収差が発生する. 垂直方向の集光はビームスプリッターに対してディスプレイと面対称の位置に形成される. しかし, 垂直方向の集光は亚克力板が円筒形状であるとすると, 凹面鏡による反射の原理に基づいて結像される. したがって, ビームスプリッターが円筒形状であるときの空中像の集光は垂直方向の結像位置を Z , 水平方向の結像位置を Z' , ビームスプリッターの曲率半径を R とすると (1) の式で表される.

$$\frac{-1}{z'} = \frac{1}{Z} - \frac{2}{R} \quad (1)$$

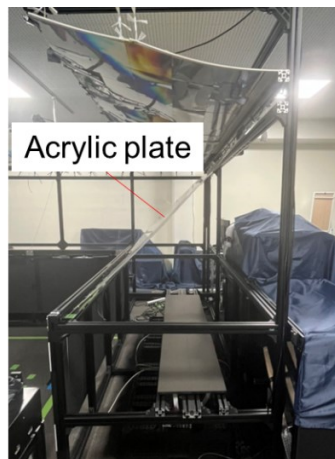


Fig. 1 Acrylic plate beam splitter.

3. 実験

亚克力板の歪みを円筒に近似するために亚克力板の側面に模造紙を貼る. 模造紙の上から亚克力板に沿って鉛筆で跡をつける. 亚克力板の両側で測定を行い, 模造紙に記した亚克力板の歪みを撮影する. 撮影された画像から亚克力板の側面の形状の2次元座標を取得した. 画像にある定規から画像の座標と実際の座標の比率を求め, その座標から最小二乗法を用いて円近似を行った. 亚克力板の両側で円近似した様子を Fig. 2 に示す. 曲率半径は両側の平均で 618 cm となった.

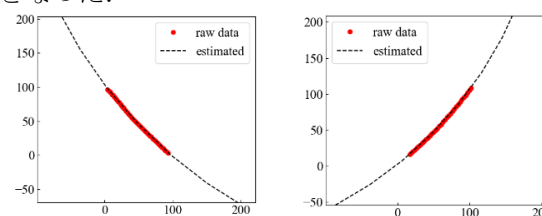


Fig. 2 Circular approximation of acrylic plate.

4. まとめ

大型空中ディスプレイにおいて, 大型の亚克力板の形状を円筒に近似することができた. 今後, 測定した曲率半径から空中像の集光位置を算出する. 亚克力板を3次元の円筒面に対して近似を行い, 光線追跡ソフトを用いて解析を行う.

参考文献

- [1] H. Yamamoto, *et al.*, *Opt. Express* **22**, 26919 (2014).
- [2] M. Yasugi, *et al.*, *J. Robot Mechatron.* **34**, 1175 (2022).
- [3] K. Inoue, *et al.*, *Opt. Rev* **29**, 261 (2022).

軸対称偏光入力による構造化偏光スポットアレイ生成 Structured polarization-spot array generation with axially symmetric polarization input

阪大院情¹, [○]洲崎泰輝¹, 小倉 裕介¹, 谷田 純¹

Osaka Univ¹,

[○]Taiki Suzaki¹ Yusuke Ogura¹, and Jun Tanida¹

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

光スポットアレイの利用はさまざまな技術の並列・同時処理などを可能にし、イメージングの照明や多点同時加工などに有用である。一方、偏光は物質の配向情報などを扱うための重要な光の属性であり[1], スポットアレイに偏光特性を付与することで機能が向上する。例えば、軸対称偏光を入射光とするスポットアレイを用いた多光子顕微鏡の性能向上が報告されている。本研究では、軸対称偏光入力から構造化偏光スポットアレイを生成する計算機合成ホログラム (CGH) の実現をめざしている。その初期検討として、独立した直線偏光のスポットアレイを生成した。設計はGerchberg-Saxton法[2] をベースに、伝搬光の偏光依存性を考慮した計算が可能なベクトル回折理論に基づく変換・逆変換と、各偏光成分を制御し統合的に扱うための拘束条件を導入することで行った。アジマス偏光とラジアル偏光入射に対して直線偏光成分ごとに異なった配置のスポットアレイを生成するCGH を設計した。設計例をFig.1に示す。アジマス偏光入射ではX偏光とY偏光で2箇所ずつ、ラジアル偏光入射では8箇所ずつにスポットを生成しする仕様にした。それぞれの偏光成分で意図した位置にスポットアレイが生成されている。次に光学実験を行った。アジマス偏光入射に対して得られたスポットパターンをFig.2に示す。これらの結果より本手法の有効性が確認できた。本手法は複屈折物質の物性測定などへの応用が期待される。

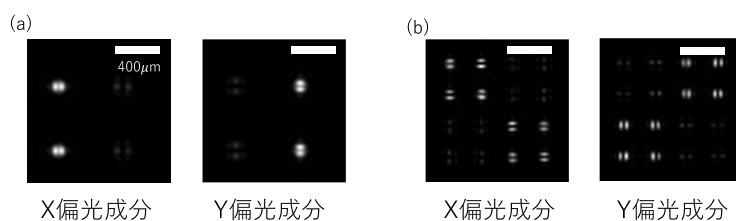


Fig. 1 Design example of spot array patterns for (a) azimuth and (b) radial polarization.

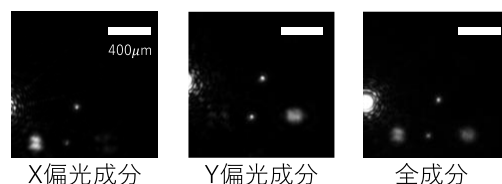


Fig. 2 Spot array patterns acquired in experiment.

本研究はJSPS 科研費JP20H05886, JP21H01844 の助成を受けたものです。

[1] Qiwen Zhan, *Adv. Opt. Photon.* **1**, 1-57 (2009).

[2] R.W. Gerchberg *et al.*, *Optik* **35**, 237-250 (1972).

ディープラーニングに基づく散乱イメージングにおける データ汚染攻撃でのトリガーサイズの影響

Effects of Trigger Size on Data Poisoning Attack in Imaging through Scattering Media by Deep Learning

立命館大理工, ○(M1)新宮 大貴, 渡邊 歴

Ritsumeikan Univ., Daiki Shingu, Wataru Watanabe

E-mail: re0155vr@ed.ritsumeai.ac.jp

1. はじめに

霧やすりガラスなどの散乱媒体は透過した光を拡散させるため、奥にある物体の認識を困難にする。散乱媒体の奥にある物体を再構成する散乱イメージングの手法として、近年汎用性の高いディープラーニングが注目されている。しかし、ディープラーニングは敵対的サンプルやデータ汚染攻撃により脆弱性を示す[1, 2]。大石らは、散乱イメージングにおけるデータ汚染攻撃において汚染データ数が及ぼす影響について調査した[2]。本研究では、データ汚染攻撃においてトリガーサイズが及ぼす影響について調査する。

2. 実験

波長 632.8 nm の He-Ne レーザーより射出した光は、空間光変調器 (SLM) によって強度物体として変調後、拡散角 10° の拡散板を透過し、スペックル画像として撮像される。SLM の入力画像には画像サイズ 160×160 ピクセルの MNIST 手書き数字を使用し、訓練用データとして 4800 枚、テストデータとして 200 枚を用いた。訓練用データの 120 枚にトリガーを付与し、本来の教師画像とは異なる目的画像を割り当てることでデータ汚染攻撃を行なった。トリガーサイズが 5×5 ピクセル、 10×10 ピクセルのトリガー画像、スペックル画像、再構成画像を Fig. 1 に示す。トリガーサイズが大きくなるとトリガー画像と異なる数字を再構成しており攻撃が成功していることがわかる。

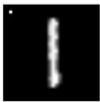
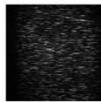
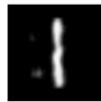

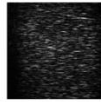

	Trigger image	Speckle image	Reconstructed image
Trigger size 5×5 pixel			
Trigger size 10×10 pixel			

Figure 1. Reconstruction results from speckle images using poisoned model.

参考文献

- [1] Y. Wang et al.: Commun. Phys. **4**, 88 (2021).
[2] K. Oishi and W. Watanabe, BISC 2022, 250239, Taipei, Taiwan (December 2022).

Randomness assisted imaging

Rakesh Kumar Singh

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

E-mail: krakeshsingh.phy@iitbhu.ac.in

Abstract:

Randomness in the light usually appears as a noise and obstacle in the optical imaging. Nevertheless, these random patterns can be used to design and develop new and un-conventional imaging methods. In this paper, we discuss and highlight potential of randomness assisted imaging.

1. Introduction

Randomness in the light is a ubiquitous feature due to interference of the randomly scattered coherent light. For instance, propagation of a coherent light through a random media generates a high-contrast, granular pattern known as laser speckle, and such patterns are considered as a noise in the optical imaging. Nevertheless, the size, shape, contrast, and locations of the speckles are useful [1].

Random scattering of light is a challenging, yet a highly practical, problem in a variety of imaging applications. Different methods have been developed to cancel the randomness from the light. Here, we discuss use of randomness rather than cancellation in the imaging, and our recent contributions in this area.

The randomness-based imaging is categorized here into two major categories. First covers examples where randomness of the light is utilized in imaging systems, i.e., randomness is by choice. This category includes applications like randomness assisted digital holography [2], Ghost imaging and Ghost diffraction [3], etc. Second category includes applications where randomness is due propagation of light through inhomogeneous media such as scattering wall, atmospheric turbulence, fog etc. This category covers examples where randomness in the light appears in the system and my focus, here, is to discuss the second category.

2. Theoretical basis and discussion

Correlation of the random light carries information of the object obscured by the scattering medium. Using correlation parameters of the light, non-invasive imaging of the object from the random field is possible using different strategy for the phase retrieval. Moreover, complex two-point correlation of the random light field can be used for new and un-conventional imaging methods [4]. For example, interference of the complex correlation functions can be found in the intensity correlation or the Stokes correlations and this approach can be used to develop new phase recovery from the randomness. One such approach is highlighted in Fig. 1.

Here object is encoded into a hologram at the scattering plane and a point source in red at the top represents a reference random source as shown in Fig. 1(a). Interference

fringes appear in the two-point correlation of the intensity as in Fig. 1(b) and its Fourier transform (FT) provides the reconstruction of amplitude and phase distributions of the object encoded into the hologram, and results are shown in Figs. 1 (c) & (e) respectively.

Polarization modulation can be used to introduce phase shifts in the intensity correlations and develop imaging methods for looking through randomness [5, 6]. Apart from the intensity correlation, correlations of the fluctuations of the Stokes parameters can also be used for imaging through randomness [7, 8].

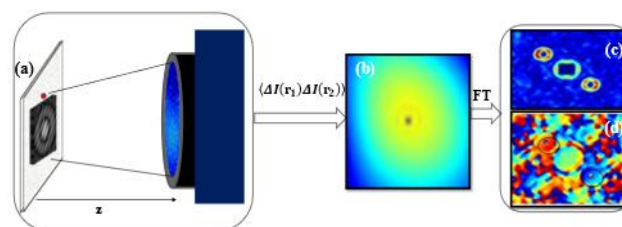


Fig. 1: Represents an example of recovering the object from randomness.

3. Conclusions

Resources of coherence theory can be explored and utilized in the development of new and un-conventional imaging methods. The key features of these initiatives are to utilize the randomness of the light and open new avenues for quantitative imaging.

Acknowledgements

R. K. Singh acknowledges support from the Science and Engineering Research Board- CRG/2019/000026 and Council of Scientific and Industrial Research (CSIR)- India.

References

- [1] J. W. Goodman, *Statistical Optics*, Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons (2015)
- [2] R. V. Vinu, Z. Chen, J. Pu, Y. Otani, and R. K. Singh, *Opt. Lett.*, 44, 5711 (2019).
- [3] R. V. Vinu, Z. Chen, R. K. Singh, and J. Pu, *Optica*, 7, 1697 (2020).
- [4] T. Sarkar, S. Chandra, and R. K. Singh, *Prog. Opt.*, 68, 101 (2023).
- [5] D. Singh, and R. K. Singh, *Opt. Express*, 26, 10801 (2018).
- [6] Li Chen, Z. Chen, R. K. Singh, and J. Pu, *Opt. Express*, 28, 8145 (2020).
- [7] T. Sarkar, V. Tiwari, S. Chandra, N. S. Bisht, and R. K. Singh, *Phys. Rev. A*, 106, 013508 (2022).
- [8] T. Sarkar, S. Chandra, V. Tiwari, N. S. Bisht, B. Das, and R. K. Singh, *Opt. Lett.*, 47, 4953 (2022).

Looking through a dynamic scatterer

Sourav Chandra^{1,*}, Tushar Sarkar¹, Raj Kumar², Bhargab Das², Rakesh Kumar Singh¹

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

²Micro Nano-Optics Center, CSIR-Central Scientific Instruments Organization, Sector 30-C, Chandigarh 160030, India

E-mail: sourav428chandra@gmail.com

Abstract:

Ability to see through a dynamic scatterer is an exciting topic of current research. Here, we demonstrate an experimental technique accomplished by Hanbury Brown-Twiss (HBT) approach to see through a dynamic scatterer.

1. Introduction

Looking through random media has long been an important research topic in adaptive optics, remote sensing, etc. [1]. Several techniques have been proposed on this issue [2]. However, a major challenge is the rapid decorrelation of the optical information in time due to the dynamics of the scatterer. Moreover, the problem is further aggravated due to the attenuation of the intensity of light in the scatterer. Here, we present an experimental technique for imaging through a dynamic scatterer. The HBT-based two-point correlation of dynamically fluctuating intensity patterns along with the digital holographic principle is implemented to see the target hidden behind a dynamic scatterer.

2. Basic principle:

Basic principle is depicted in Fig. 1. Figure shows the recording of dynamically fluctuating intensity patterns composed of a superposition of coherent waves emerging from a target (star) and an off-axis reference point source by a high-speed camera [Photron Fastcam SA-Z].

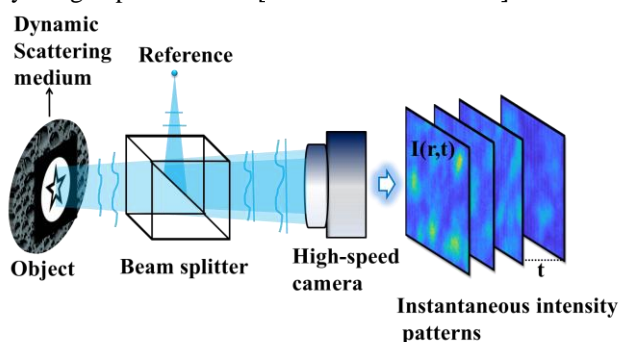


Figure 1: Instantaneous intensity patterns captured by a high-speed camera through a dynamic scattering medium.

The HBT-based two-point correlation of the intensity fluctuations for different realizations of the random fields is estimated as

$$C(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \sum_{m=1}^{10000} \langle \Delta I_m(\mathbf{r}_1) \Delta I_m(\mathbf{r}_2) \rangle, \quad (1)$$

where $\Delta I(\mathbf{r}) = I(\mathbf{r}) - \langle I(\mathbf{r}) \rangle$ is the fluctuation of intensity over its average value, and m represents each realization of

the random intensity patterns.

The dynamically fluctuating intensity patterns are independent and assumed to obey Gaussian statistics [3]. Hence, the fourth-order correlation can be expressed in terms of the second-order correlations as

$$C(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = |W(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) + W_R(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)|^2, \quad (2)$$

where $W(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \langle U^*(\mathbf{r}_1) U(\mathbf{r}_2) \rangle$,

$W_R(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \langle U_R^*(\mathbf{r}_1) U_R(\mathbf{r}_2) \rangle$ represents complex coherence function for the target and reference field, respectively, and $\langle \rangle$ represents the temporal average.

3. Experimental results

From the cross-covariance of the experimentally detected 10000 intensity patterns, using the Fourier fringe analysis, the target hidden behind the dynamic scatterer is recovered with this technique.

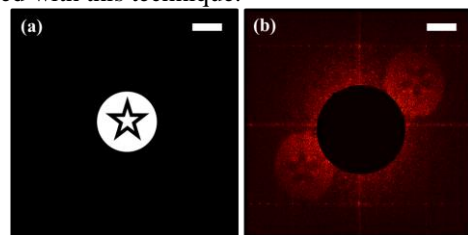


Figure 2. Experimental Results: (a), (b) show the original target 'star' and corresponding recovered target as a distribution of the Fourier transform of the cross-covariance. Scale bar: 2.5 mm.

Figure 2(a) shows the original target, and 2(b) shows the recovered target as a distribution of the Fourier transform of the cross-covariance.

4. Conclusions

We have demonstrated an imaging technique that utilizes an HBT-based correlation of the intensity fluctuating patterns captured with a high-speed camera and subsequent reconstruction of the incoherent target hidden behind the dynamic scatterer.

Acknowledgements

S. Chandra acknowledges support from the IIT (BHU).

References

- [1] J. Rosen, H. B. de Aguiar, V. Anand, et al., Appl. Phys. B 128, 49 (2022).
- [2] T. Sarkar, S. Chandra, and R. K. Singh, Prog. Opt., 68, 101 (2023).
- [3] Hanbury Brown-Twiss approach for imaging through dynamic scattering medium (accepted in Opt. Lett.).

Hermite-Gaussian Superposition Modes for Speckle-Guided Demultiplexing

Trishita Das[†], Manas Ranjan Pandit, Purnesh Singh Badavath, Vijay Kumar*
 Department of Physics, National Institute of Technology Warangal, Telangana, India-506004.
 Author e-mail address: [†]trishitadas1998@gmail.com; *vijay@nitw.ac.in

Abstract:

Free-space optical communication is a cutting-edge technology for high-speed data transfer over long distances. Structured light modes like Hermite-Gaussian (HG) modes improve information transfer [1,2]. To enhance channel capacity and reduce cross-talk among higher-order modes, we use lower-order HG superposition (HG-SP) modes, which are more resilient to perturbations [3]. The light field of HG-SP is described by $E(x, y, z) = \sum_i \alpha_i HG_{m_i, n_i}(x, y, z) \exp(i\Delta\phi_i)$ where the three independent parameters, (m, n) modal indexes of HG modes, $\exp(i\Delta\phi_i)$ relative initial phases between the i^{th} and 1^{st} HG mode, and α_i scale coefficients between modes, can obtain a large number of effective coding modes at a low mode order. From the large set of possible HG-SP modes, we have generated distinguishable HG-SP modes for better classification accuracy. Traditional machine learning methods rely on direct mode intensity images, which are sensitive to alignment and require capturing the entire mode for classification. This poses challenges in accurately identifying original modes and decoding encoded information. To overcome this, we utilize the more stable and noise-robust far-field speckle patterns of HG-SP modes. We used a deep learning approach with a Convolutional Neural Network (CNN) to decode encoded information from far-field speckle patterns of HG-SP modes[3-5]. The CNN achieved >99% accuracy in distinguishing between modes. We selected 37 HG-SP modes to encode alphabets and digits. In simulations of an optical communication link, our method successfully reconstructed encoded phrases with >98% accuracy. This demonstrates the potential for increasing channel capacity and improving reliability in free-space optical communication.

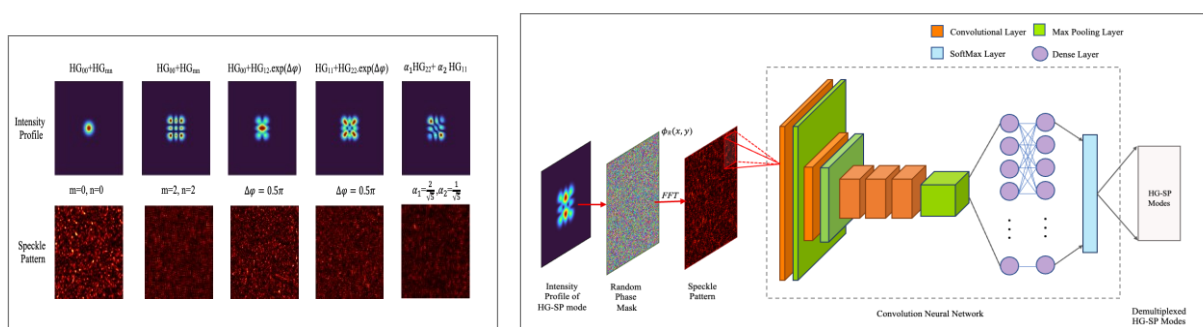


Fig.(1) HG-SP modes: 1st and 2nd with $\Delta\phi = 0$ and $\alpha_1 = \alpha_2 = 1$, 3rd and 4th with $\Delta\phi = 0.5$, 5th with $\alpha_1 = 2/\sqrt{5}$ and $\alpha_2 = 1/\sqrt{5}$ and their respective far-field speckle patterns are shown above. Fig(2) Workflow to train the CNN for the recognition of HG-SP modes through their far-field speckle patterns.

Acknowledgement: SERB India (SRG/2021/001375)

References:

1. A. E. Willner, H. Song, K. Zou, H. Zhou, and X. Su, "Orbital Angular Momentum Beams for High-Capacity Communications," *Journal of Lightwave Technology*, **41**-7, 1918 (2023)
2. M. A. Cox et al., "The resilience of Hermite- and Laguerre-Gaussian modes in turbulence," *J. Lightwave Technol.*, **37** 3911–3917, (2019)
3. V. Raskatla, B. P. Singh, S. Patil, V. Kumar, and R. P. Singh, "Speckle-based deep learning approach for classification of orbital angular momentum modes," *Journal of the Optical Society of America A* **39**, 759 (2022).
4. V. Raskatla, B. P. Singh, Vijay Kumar, "Speckle-learned convolutional neural network for the recognition of intensity degenerate orbital angular momentum modes," *Opt. Eng.* **62**, 036104 (2023).
5. B. P. Singh, Venugopal Raskatla, T. Pradeep Chakravarthy, and Vijay Kumar, "Speckle-based structured light shift-keying for non-line-of-sight optical communication," *Appl. Opt.* **62**, G53-G59 (2023).

Privacy-Preserving Human Behavior Estimation with Sparse Sensor Measurements

Mariko Isogawa¹

Keio Univ.¹

E-mail: mariko.isogawa@keio.jp

Most conventional methods for person behavior estimation acquire information that can easily identify the person, such as images that include information on the face and clothing or acoustic information that includes voice, speech content, musical instrument playing sound, etc. Instead, we have been tackling proposed methods that do not acquire them towards privacy-preserving human behavior estimation. Specifically, we have been working on 3D human pose estimation with binary images [1], laser reflection [2], acoustic signals [3], and human mesh estimation with event data [4], making it possible to estimate human behavior in various situations while protecting personal information. In this talk, I will introduce our recent work on these topics.

Acknowledgment. Works introduced in this talk were partially supported by JST Presto JPMJPR22C1 and Keio University Academic Development Funds.

References

- [1] Ryosuke Hori, Ryo Hachiuma, Mariko Isogawa, Dan Mikami, and Hideo Saito, “Silhouette-based 3D Human Pose Estimation Using a Single Wrist-mounted 360 ° Camera”, IEEE Access, vol. 10, pp. 54957-54968, 2022.
- [2] Mariko Isogawa, Ye Yuan, Matthew O’Toole, and Kris Kitani, “Optical Non-Line-of-Sight Physics-based 3D Human Pose Estimation”, IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition (CVPR), pp. 7013-7022, 2020.
- [3] Yuto Shibata, Yutaka Kawashima, Mariko Isogawa, Go Irie, Akisato Kimura, Yoshimitsu Aoki. “Listening Human Behavior: 3D Human Pose Estimation with Acoustic Signals”, IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition (CVPR), pp. 13323-13332, 2023.
- [4] 堀 涼介, 五十川 麻理子, 三上 弾, 斎藤 英雄, “イベントカメラを用いた三次元人物姿勢および形状推定”, 情報処理学会 コンピュータビジョンとイメージメディア研究会, 2022年11月研究会.

波長多重による高速ゴーストイメージング

High-Speed Ghost Imaging by Wavelength Multiplexing

○高梨健太, 加納宏弥, 大野博司

R&D Center, Toshiba Corp.,

○Kenta Takanashi, Hiroya Kano, and Hiroshi Ohno

E-mail: kenta2.takanashi@toshiba.co.jp

1. 背景

製品の開発や製造において、製品の内部や表面からの微弱光を用いた検査・計測に需要がある。そのような検査・計測においては単一光子レベルの極めて微弱な信号を測定することが求められ、一般的なカメラでの撮影は困難である。そこで、光電子増倍管(PMT; photomultiplier tube)のような高い検出感度を持つ単一検出器で画像を得る“シングルピクセルイメージング(SPI; single-pixel imaging)”が近年研究されている。SPIの一種に“計算機ゴーストイメージング(CGI; computational ghost imaging)”がある[1][2]。CGIは、サンプルに2次元パターン光を投影し、その透過または反射光の光強度を単一検出器で測定する。そうして得られた光強度と、投影したパターン光との相関からサンプルの像を再構成する手法である。CGIは、一般的には再構成する画像の画素数と同程度、またはそれ以上の測定を繰り返すので、測定に時間がかかる。そのため、リアルタイムでの検査のように、迅速な測定が求められる場合には高速化が課題となる。

2. 方法

本研究では、CGIの測定時間を短縮する手法として波長多重による高速ゴーストイメージングを提案する。本手法は、波長ごとに異なる2次元パターンを重畳したパターン光をサンプルに投影し、分光性能を持つ検出器で複数波長分の信号を同時に測定する。これにより、本手法は従来手法と比べ、同じ測定数から画像を再構成する場合の測定時間を重畳させた波長数に応じて短縮できる。Fig. 1に光学系の模式図を示す。本研究では波長多重ゴーストイメージングの原理検証実験として、それぞれ波長域の異なる3種のLED光源で2次元パターン光を投影

し、その反射光強度を分光性能をもつ検出器で測定した。さらに、そうして得られた波長ごとの光強度を互いに無相関かつ等価に扱うことで画像を再構成する手法を構築した。

3. 結果・結論

Fig. 2に本手法と従来手法とで同じサンプルを再構成した結果を示す。本研究では3種類の独立した波長を用いた。これにより、約1/3の測定回数で従来手法と同程度の再構成画像が得られることを確認した。すなわち、波長多重による高速ゴーストイメージングが実現できることを実証した。

- 1) J. H. Shapiro, “Computational ghost imaging”, Phys. Rev. A **78**, 061802 (2008).
- 2) Jian Huang and Dongfeng Shi, J. Opt. **19**, 075701 (2017).

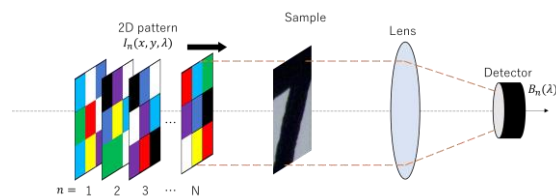


Fig. 1. Schematic diagram of wavelength-multiplexed ghost imaging.

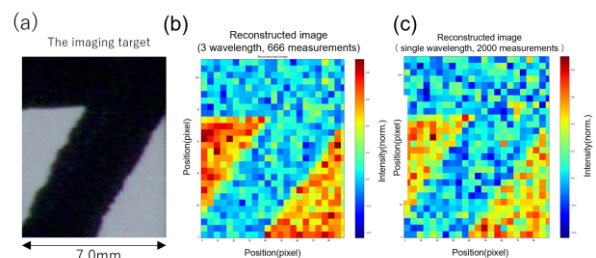


Fig. 2. (a)The imaging target. (b) The reconstructed image by wavelength-multiplexed ghost imaging (666 measurements). (c)The reconstructed image by conventional ghost imaging (2000 measurements).

圧縮センシング方式高感度ハイパースペクトルカメラ

Compressed sensing-based highly sensitive hyperspectral camera

パナソニック ホールディングス (株)

○ 細川 誓, 八子 基樹, 山岡 義和, 清原 孝行, 石川 篤

Panasonic Holdings Corporation, °Chikai Hosokawa, Motoki Yako, Yoshikazu Yamaoka,

Takayuki Kiyohara, Atsushi Ishikawa

E-mail: hosokawa.chikai@jp.panasonic.com

背景・目的

被写体の多波長画像を取得するハイパースペクトルカメラ (HSC) は、RGB カメラを超える豊富な色情報を取得でき、画像認識・分析の用途拡大や精度向上が期待される。しかし、既存の HSC は、感度やフレームレートが原理的に低く、用途や利便性に課題があった。我々は、ランダムフィルタを用いて効率的にスペクトル情報を圧縮するセンシング手法を提案し、RGB カメラ相当の感度で動画撮影可能な HSC を実現した[1]。

デバイス構成および撮像原理

ランダムフィルタは、イメージセンサの画素と同サイズで 64 種類の異なる透過スペクトルを有するフィルタセルを空間的にランダム配置したものである。これをイメージセンサに実装することで被写体のスペクトル情報を圧縮し、各画素の輝度情報として撮影する。この圧縮画像にスパース性に基づく画像再構成処理を施すことで、多波長画像を得る (Fig 1)。本方式におけるカメラの感度はランダムフィルタの透過率によって決まる。理想的なランダム

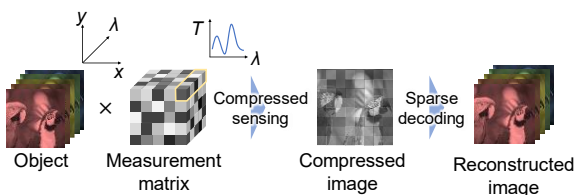


Fig 1. Conceptual scheme of the compressive HSC.

フィルタでは各波長において 0%から 100%までの透過率を持ち、可視光全域の透過率は 50%程度になる。これは、ハードウェア上で分光することで波長数と感度が概ね反比例する、従来の HSC がもつ原理的な課題を解決できる。

感度比較

同一のイメージセンサ (ams 製、CMV2000) を使用したモノクロカメラ、圧縮センシング方式 HSC、RGB カメラ、従来 HSC の感度比較を行った。Fig2. a-d に、可視光域 (450-650nm)、露光時間 10 msec、550 lux で撮影した画像を示す。図中の赤点線枠内において、モノクロカメラの感度を 100%としたときの感度は、圧縮 HSC が 45%、RGB カメラが 37%、従来 HSC が 4%であり、圧縮 HSC の感度は RGB カメラと同等以上、従来 HSC の 10 倍以上であった。

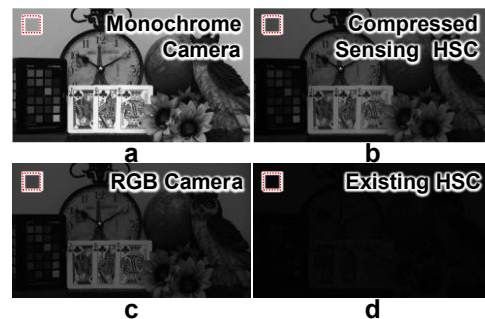


Fig 2. Images taken in indoor lightning environment.

[1] M. Yako, et al., *Nat. Photon.*, **17**, 218–223 (2023).

ロンキー回折格子の特性を用いた単一露光コンプレッシブ分光イメージング

Single-shot compressive hyperspectral imaging using diffracted lights by Ronchi grating.

和歌山大院システム工¹, 和歌山大システム工², [○](M2)高橋 亮平¹, 最田 裕介², 野村 孝徳²

Grad. Sch. Sys. Wakayama Univ.¹, Fac. Sys. Wakayama Univ.² [○]Ryohei Takahashi¹, Yusuke Saita², Takanori Nomura²

E-mail: s236153@wakayama-u.ac.jp

分光イメージングは、各波長における二次元空間光強度分布を取得することにより、計測物体のもつ波長情報を分光画像として可視化する技術である。これまで、計測物体の形状情報を大きく損なうことなく分光画像を取得する手法 [1] を提案してきた。この手法では、0 と 1 の振幅透過率がランダムな分布をもつ符号化開口と、回折格子、撮像素子からなる光学系を通して、0 次回折光と 1 次回折光の強度分布を取得し、得られた強度分布を圧縮センシング [2] に基づいた再構成アルゴリズムを用いて解析することにより、分光画像を推定できる。しかし、この手法では波長情報の推定に用いる 1 次回折光から推定する情報が多く、推定に誤りが生じるという問題があった。本研究ではこの問題に対し、1 次回折光だけではなく、Ronchi 回折格子を用いた際に生じる -1 次回折光も推定に使用することを提案する。-1 次回折光は 1 次回折光と光波の分散方向が異なる。すなわち、-1 次回折光は 1 次回折光とは波長ごとの光波の重畳した分布が異なる。そのため、これを分光画像の推定に用いることにより、波長情報の推定精度向上が期待できる。

Fig. 1 に示す光学系を用いて原理検証実験をおこなった。計測物体には、中心波長がそれぞれ、450 nm, 600 nm, 半値全幅がそれぞれ 10 nm, 25 nm のバンドパスフィルタを用いて作製したものをを用いた。実験により取得された強度分布を用いて従来手法および提案手法により分光画像の推定をおこなった。推定した分光画像のうち、450 nm, 490 nm, 501 nm, 600 nm の画像を Fig.2 に示す。使用したバンドパスフィルタの透過域以外の分布が存在しない波長が、Fig. 2 (a)では誤って検出され、正しく推定がおこなわれていないのに対し、Fig. 2 (b)では当該箇所は検出されず正しく推定できている。このことから提案手法の有用性が示された。

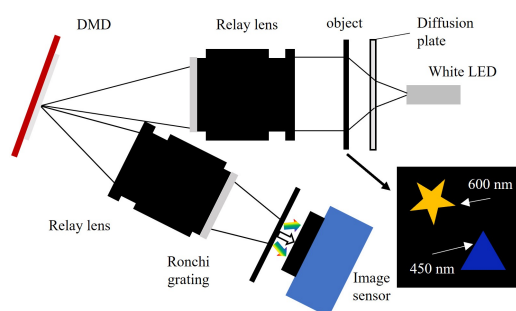


Fig. 1: Optical setup

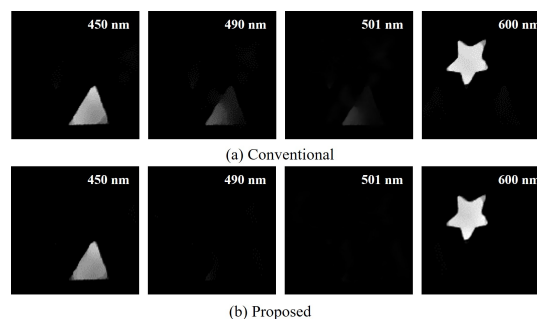


Fig. 2: Spectral images

[1] Y. Saita, *et al.*, *Appl. Opt.* **61**, 1106 (2022).

[2] D. L. Donoho, *IEEE Trans. Inf. Theory.* **52**, 1289 (2006).

1点読み出し時間ドメインゴーストイメージング

Temporal Ghost Imaging Enabled by One-Time Readout

東大院総合文化¹ ○(M2) 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

時間ドメインのゴーストイメージング (TGI)^[1]は、非同軸な2光子の検出時刻の相関にもとづくの時系列データの再生技術である。対応する時刻でのみ信号が得られる相関関数の排他性のおかげでTGIは雑音背景から微弱信号を弁別し、測定対象(時間マスク)に忠実なゴーストイメージを生成する。空間ドメインGI^[2]と同様にこれを利用したセンシング等への応用が期待されている。

従来のTGIでは、低速検出器の読み出しをマスク周期よりも長く設定し、計算機上で積算する。しかし、計算機の占有状況が長期続くことでTGIの計算とは無関係にパフォーマンスが低下する。この問題を解決すべく我々は、低速検出器の読み出しを1回に限定することで、計算機の占有状況から解放される1点読み出し方式の新しいTGI(OTR-TGI)を開発した^[3,4]。ところがGIと同様に原理的に雑音に脆弱^[5]なため動作時間が制限される^[3,4]。ここではその根本的な解決を図る^[5]。

光強度を $I(t)$ 、検出器の応答関数を $\mu(t)$ とすると時刻 T での検出器出力は $I_{OTR}(T) = \int_{-\infty}^T dt' \mu(T-t')I(t')$ と書ける(図1左)。これは過去の光の情報を時刻 T に集約する時間レンズとしての効果をもち、従前のTGIの計算機上での積算操作を代替する。これをバケツ検出と読み替え、時間マスク $M(t)$ についてのゴーストイメージ $M_{OTR-TGI}(t)$ を計算すると

$$M_{OTR-TGI}(t) = \langle \Delta I_R(t) \Delta I_{OTR}(T) \rangle = \int_{-\infty}^T dt' \mu(T-t') M(t') \langle \Delta I_R(t) \Delta I_T(t') \rangle = \mu(T-t) M(t)$$

を得る。ただし添え字Rは参照アーム、Tはバケツ検出するテストアームを示す。1点読み出しの影響で時間マスクのゴーストイメージは応答関数の包絡線をもつが、除算によって補正できる。

発光ダイオード(LED)と太陽電池(SC)を低速検出器とする2つのOTR-TGI系を実装した。立ち下がり応答の時定数 τ_{LED}, τ_{SC} と比較してLEDでは $2\tau_{LED}$ 程度、SCでは $3\tau_{SC}$ 以上再現するゴーストイメージを得た(図1中央)。LEDでは読み出し点から離れるにつれて指数増大する不規則雑音が観測されたことからシミュレーションによる原因の特定を試みた。その結果、応答関数の除算補正によって相互相関項 $\langle \Delta I_R(t) \Delta I_T(t' \neq t) \rangle$ が読み出し時刻近傍では抑制されるが、遠方では増幅されることがわかった。そこで相互相関項を抑制する目的で直交基底をもつWalshパターンによる構造化照明を用い、雑音の抑制とOTR-TGIの動作時間の大幅な拡大に成功した(図1右)。

本研究の一部は、科研費補助金 学術変革領域研究(A) 21H05585, 23H04130を受けて行われた。

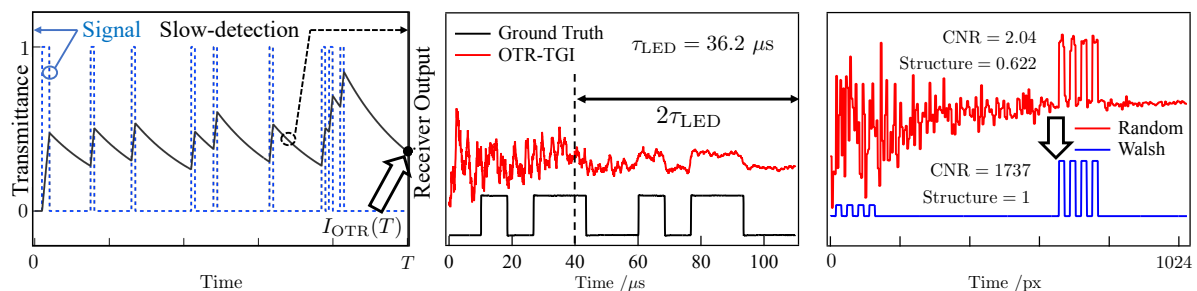


図1: 時系列信号と低速検出器出力(左)、LED実装OTR-TGI(中央)、構造化照明(Walsh関数)によるOTR-TGI(右)

[1] P. Ryczkowski *et al.*, Nat. Photonics **10**, 167 (2016).

[4] Y. O-oka, R. Keyaki *et al.*, Opt. Lett. **48**, 3307 (2023).

[2] T. B. Pittman *et al.*, Phys. Rev. A **52**, R3429 (1995).

[5] R. Keyaki, S. Fukatsu, Appl. Phys. Express **16**, 062007 (2023).

[3] Y. O-oka *et al.*, JSAP Fall Meeting 19a-E204-1-11 (2019).

[6] R. Keyaki, S. Fukatsu, Appl. Phys. Lett. (to appear).

スペクトル符号化単一ファイバイメージングにおける標本化法の検討

Sampling method in spectrally encoded single-fiber imaging

富山大医薬理工, ^{○(M1C)}野々目 久祥, 大嶋 祐介, 片桐 崇史

Graduate School of Pharma-Medical Sciences, Univ. of Toyama,

[○]Hisayoshi Nonome, 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。これまで、伝送用ファイバを多芯化することにより、ノイズ耐性が向上し、高速に測定した信号雑音比の低い信号から、高精度な画像再構成が可能となることを明らかにした。本研究は、キャリブレーションデータの標本化に着目し、少ない測定数から高精度な画像再構成を実現し、更なる高速化を実現する手法について検討した。

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、撮像面内に点光源を順次移動させ、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、点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。得られたスペクトルデータを行列 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 は点光源のスペクトルデータ 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。

$$Ax = b$$

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。

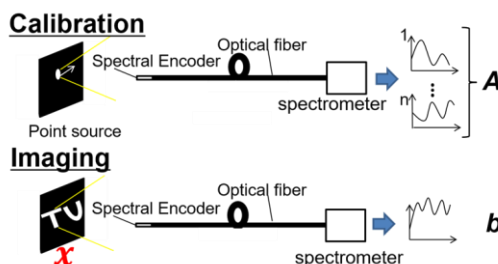


Fig. 1 Principle of single fiber imaging.

3. 標本化による高速化の検討

データは、ファイバ端からの距離 1 cm における校正面において、5 μm の蛍光スポットを 10 μm ステップで移動することにより直線上で 201 点を取得した。

Fig. 2 は、全測定波長域におけるキャリブレーションデータの空間周波数特性である。図より、キャリブレーションデータの周波数帯域は、約 0.08 cycle/point であることから、標本化定理より、サンプリング周波数は 0.16 cycle/point と見積もられる。これは、201 点のキャリブレーションデータを約 1/6 の 34 点に削減できることを意味している。

Fig. 3 にサンプリング周波数を変化させた場合の位置推定精度の比較を示す。位置推定精度は SSIM により評価した。キャリブレーションデータの復元には、線形補間と平滑化処理を用いた。図より、サンプリング周波数 0.125 以上で高い位置精度が維持されることを確認した。このことは、測定数を従来の約 1/8 に削減可能であることを示唆している。

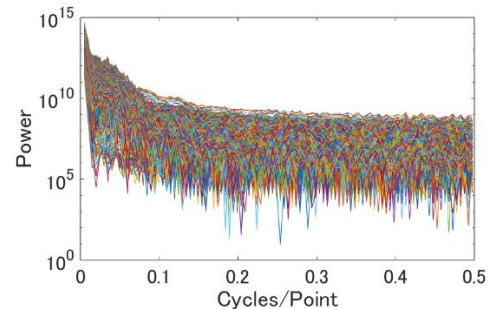


Fig. 2 Frequency property of Calibration data

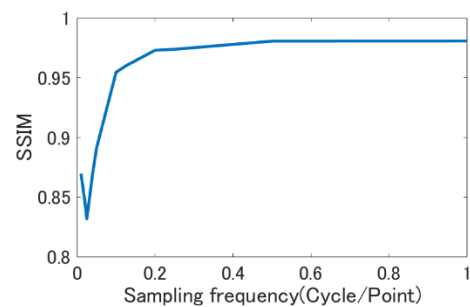


Fig. 3 Evaluation result of localization accuracy

参考文献

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

単一画素計測を用いた波面計測のための深層学習適用

Verification of reconstruction with deep learning for 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, 的場 修

Kobe Univ.¹, Naohiro Kobayashi, °Kouichi Nitta, Osamu Matoba

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⁾。このセンサーは SPI の特徴である、微弱光照射環境下における適性を発揮することが期待される。

本報告では、SPI を波面センサーに適用する際に課題となる輝点座標の特定方法について、深層学習を用いた。図 1 に示すように、計測光学系ではマイクロレンズアレイの焦平面をデジタルマイクロミラーデバイス(DMD)面に結像させる。DMD において変調された光信号分布は集光されフォトディテクターにおいて検出される。複数の変調分布に対して計測を行い、取得データから計算機ゴーストイメージングを用いて画像を再構成する。再構成した画像に対して深層学習を適用し、輝点の中心座標を特定する。図 2 に実験による検証結果を示す。図 2(a)は DMD 面にイメージセンサーを配置して取得した結果、(b) は計算機ゴーストイメージングによる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 2 より、視認性に課題が残るものの、輝点を確認することができている。講演では、補償光学への適用に向けた課題についても言及する予定である。

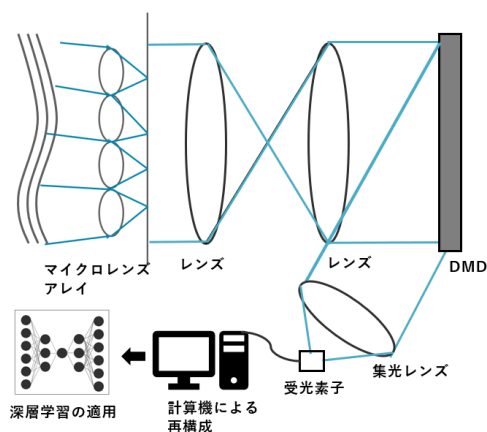


図 1 シングルピクセルイメージングによる波面計測系の概念図。

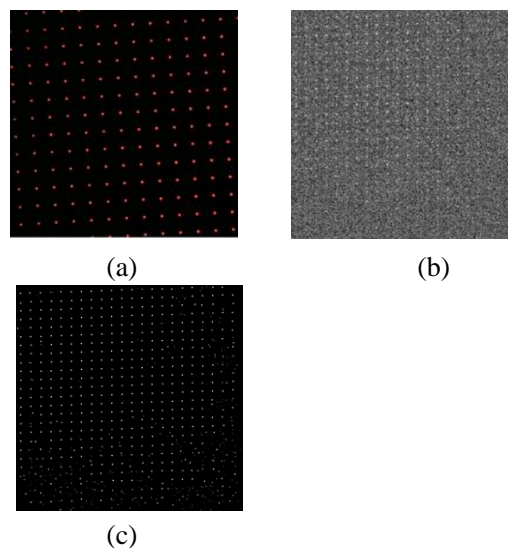


図 2 検証結果: (a)従来手法による結果.
(b) 計算機ゴーストイメージングによる再構成.
(c)提案手法による結果.

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).

ゼルニケ型位相差顕微鏡における位相回復アルゴリズム

A Phase Retrieval Algorithm for Zernike Phase-Contrast Microscopy

東大情理¹, 東大理²○(M2) 蔵田 力丸¹, 戸田 圭一郎², 石金 元気², 成瀬 誠¹, 井手口 拓郎², 堀崎 遼一¹The Univ. of Tokyo (IST¹, Science²), ○(M2)Rikimaru Kurata¹, Keiichiro Toda², Genki Ishigane²,Makoto Naruse¹, Takuro Ideguchi², Ryoichi Horisaki¹

E-mail: kurata-rikimaru484@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

ゼルニケ型位相差顕微鏡 (Zernike Phase-Contrast Microscope: ZPM) は、簡易な光学系による透明試料の非染色可視化が可能なことから、医学、生理学分野などで広く利用されている [1]。しかし ZPM は、照明光の部分可干渉性により生じるハローなどのアーティファクトの影響や、線形性が担保できる試料位相レンジの狭さから、非定量的な位相イメージング法とされてきた。一方で、生体細胞の定量解析などのために、Digital Holography (DH) に代表される定量的な位相イメージング法の開発が進められているが、ZPM のような普及には至っていない [2]。そこで本研究では、ZPM に定量性を付与すべく、無改造の ZPM による撮影画像 1 枚から、被写体の位相を定量的に再構成するアルゴリズムを提案し、その評価を行った。

本研究で提案するアルゴリズムの概要を Fig. 1 に示す。ZPM のコンデンサ環 c に由来する部分可干渉性を厳密に取り扱うモデルとして、本手法では Compressive Propagation (CP) を採用した [3]。CP において、部分可干渉光は M 枚のランダム波面群 $\{w_m\}$ として扱われ、ZPM の順過程は以下のように表される：

$$i = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M |F^{-1} \text{diag}(p) F \text{diag}(\exp(j\theta)) F^{-1} \text{diag}(c) w_m|^2. \quad (1)$$

ここで、 θ は透明試料の位相分布、 p は位相リング、 i は観測強度画像である。また、 F はフーリエ変換、 F^{-1} は逆フーリエ変換、 diag は対角行列化作用を示す。 $\hat{\theta}$ を推定変数とすると、位相 $\hat{\theta}$ の回復問題は、コスト関数 $e = \|\hat{i} - i\|_2^2$ の最小化問題として表される。勾配 $\nabla e = \partial e / \partial \hat{\theta}$ を計算し、勾配降下法に従うことで、この最小化問題を解く。

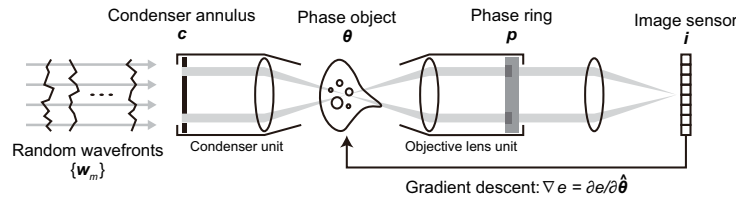
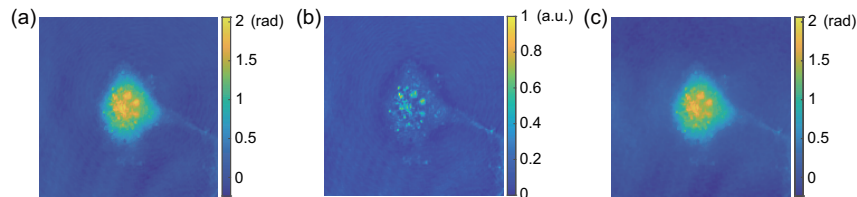


Fig. 1: Forward and backward processes of ZPM.

提案した位相回復アルゴリズムの数値実験結果を Fig. 2 に示す。DH 顕微鏡 [4] により得られた Fig. 2(a) に示す単細胞位相画像 θ に対し、Fig. 1 および Eq. (1) で示した順過程モデルを適用して算出された ZPM 撮影画像 i が Fig. 2(b) である。 i から位相回復アルゴリズムによって得られた位相回復画像 $\hat{\theta}$ が Fig. 2(c) である。 $\hat{\theta}$ と θ の二乗平均平方根誤差は 0.09 rad であり、ZPM による定量位相イメージングを数値的に実証したと言える。これに加え、市販の ZPM を用いた光学実験による提案手法の実証も完了している [5]。

Fig. 2: Simulation result. (a) Phase image θ of a cell. (b) Intensity image i calculated by the ZPM model. (c) Retrieved phase image $\hat{\theta}$.

参考文献

[1] F. Zernike, Science **121**, 345–349 (1955). [2] Y. Park *et al.*, Nat. Photonics **12**, 578–589 (2018). [3] R. Horisaki *et al.*, Opt. Lett. **47**, 613–616 (2022). [4] G. Ishigane *et al.*, arXiv:2208.11969 (2022). [5] R. Kurata *et al.*, arXiv:2305.05156 (2023).

余剰段構造による多面光波変換型ユニタリ変換器の高速な構成法

Rapidly convergent unitary processor using few-layer-redundant multi-plane light conversion

東大先端研¹, Preferred Networks Inc.², 東大院工³,

○田口 富隆¹, 王 允卓², 田之村 亮汰³, 種村 拓夫³, 小関 泰之¹

Univ. Tokyo¹, Preferred Networks Inc.²,

○Yoshitaka Taguchi¹, Yunzhuo Wang², Ryota Tanomura¹, Takuo Tanemura¹, Yasuyuki Ozeki¹

E-mail: ytaguchi@ginjo.t.u-tokyo.ac.jp

任意光ユニタリ変換器は量子光学、機械学習、光通信等の分野で注目されているが、変換器の作成誤差によりアプリケーションの性能が制限されるため、作成誤差の補償に関する研究が行われてきた。変換器の構成法のうち、多面光波変換 (MPLC: multi-plane light conversion) を用いたものは極めて高い作成誤差耐性を持つことが知られている。しかし、MPLC 型はその複雑な数学的構造により所望のユニタリ変換を実現するための高速な構成法が知られていなかった。本研究では、ユニタリ行列最適化問題の数学的性質を考察し、MPLC 型ユニタリ変換器に余剰段数を付け加えることで高速に構成可能になることを示したので紹介する [1]。

図 1 に、提案する MPLC 型ユニタリ変換器の構成を示す。緑点線で挟まれた部分が変換器の各段を示しており、赤の四角で表されたモードごとの位相シフタと、黒の四角で表された N モードミキサから構成される。合計段数は m である。 N モードユニタリ変換が持つ自由度と、段数 $m = N$ の MPLC 型ユニタリ変換器の自由度が等しいため、従来は段数 $m = N$ として研究が行われてきた。この場合、各位相シフタのシフト量を変数とみた行列最適化問題は単峰性がなく、焼き鈍し法などが採用されてきた。図 2 に、段数 m を変えながら行列最適化に L-BFGS 法を適用した場合の収束の様子を示す。縦軸は行列の距離を、横軸はステップ数を表し、実線は中央値を、点線は四分位を、色の付きの部分が最大値と最小値を示す。段数 $m = N$ の場合は局所解にはまることが分かるが、 $m > N$ として余剰にすることで安定した最適化が実現できていることが分かる。加えて、 $N = 128$ の場合も図 3 に示す通り他構造 [2] と比較して数桁に及ぶ良好な精度を実現可能である。

以上のように、MPLC 構造が余剰段数に良い最適化特性を獲得することを示し、その特性を数値計算により評価した。詳細は公演で報告する。

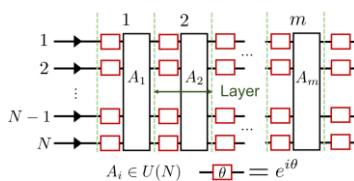


図 1 MPLC 構造の概略図。赤四角: 位相シフタ、黒四角: モードミキサ

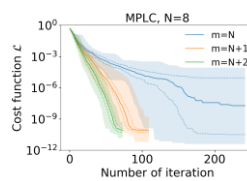


図 2 $N = 8$ の場合の収束の様子。 $m > N$ が余剰段を持つ。

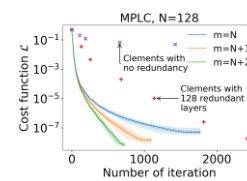


図 3 $N = 128$ の場合の他構造 [2] との収束性の比較

参考文献

[1] Y. Taguchi *et al.*, Phys. Rev. Appl., **19**, 054002 (2023)

[2] W.R. Clements *et al.*, Optica **3**, 1460 (2016)

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.2] Code-sharing Session of 3.2 & 4.4

[21a-A310-1~9] CS.2 Code-sharing Session of 3.2 & 4.4

Bunsen Masatoshi(Fukuoka University)

Thu. Sep 21, 2023 9:00 AM - 11:30 AM A310 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

[21a-A310-1] Photonic reservoir computing chip using a snake-crawling-shaped multimode waveguide

○Hideaki Tanaka¹, Takashi Kan¹, Shota Ishimura¹, Hidenori Takahashi¹, Takehiro Tsuritani¹, Katsuyuki Utaka², Masatoshi Suzuki^{1,2} (1.KDDI Research, 2.Waseda Univ.)

9:00 AM - 9:15 AM

[21a-A310-2] Estimation of a quantum dot network based on cyber-physical system

○Kazuki Yamanouchi¹, Suguru Shimomura¹, Jun Tanida¹ (1.Osaka Univ.)

9:15 AM - 9:30 AM

[21a-A310-3] Depth Measurements of Fluorescent Beads by Combination of Transport of Intensity Equation and Iterative Phase Retrieval Method

○Shiori Matsuda^{1,2}, Naru Yoneda^{1,3}, Manoj Kumar^{1,3}, Osamu Matoba^{1,3} (1.Grad. Sch. System Informatics, Kobe Univ., 2.JSPS Research Fellow DC, 3.OaSIS, Kobe Univ.)

9:30 AM - 9:45 AM

[21a-A310-4] Aberration measurement in optical setup based on transport of intensity equation

○(M1)Shuhei Kasuda¹, Yoshio Hayasaki¹, Satoshi Hasegawa¹ (1.Utsunomiya Univ.)

9:45 AM - 10:00 AM

[21a-A310-5] Position and Posture Detection of Geometric Pattern Marker by Using a Single Camera

○Daisuke Barada^{1,2} (1.Opt. Eng., Utsunomiya Univ., 2.CORE, Utsunomiya Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM

[21a-A310-6] Investigation of Optical Diffraction Tomography using Iterative Methods Considering Constraint Condition

○Tomoaki Komatsu¹, Yoshida Shuhei¹ (1.KINDAI UNIVERSITY)

10:30 AM - 10:45 AM

[21a-A310-7] Interpixel Crosstalk Separation by Using Volume Holographic Optical Element

○Kaita Murakami¹, Daisuke Barada^{1,2} (1.Opt.Eng.,Utsunomiya Univ, 2.CORE,Utsunomiya Univ)

10:45 AM - 11:00 AM

[21a-A310-8] Evaluation of the Effect of Hologram Discretization on Signal Reconstruction Characteristics in a Shift-Multiplexing Surface Holographic Memory

○Soki Hirayama¹, Ryushi Fujimura², Yoshito Tanaka³, Tsutomu Shimura¹ (1.IIS The Univ. of Tokyo, 2.Utsunomiya Univ., 3.RIES Hokkaido Univ.)

11:00 AM - 11:15 AM

[21a-A310-9] Verification of atmospheric turbulence beam propagation simulation
by 1 km laser energy transmission experiment

○Natsuha Ochiai¹, Yohei Toriumi¹, Yukiko Suzuki¹, Kazuto Kashiwakura¹, Toru Tanaka¹,
Kazuhisa Onda², Kohei Kawazoe², Yoshiaki Takeuchi², Yoichiro Tsumura² (1.NTT SE Lab.,
2.M.H.I. R&I Center)

11:15 AM - 11:30 AM

蛇行状マルチモード導波路を用いた光リザーバーコンピューティングチップ

Photonic reservoir computing chip using a snake-crawling-shaped multimode waveguide

KDDI 総合研究所¹, 早大理工² ◯田中英明¹, 菅貴志¹, 石村昇太¹, 高橋英憲¹, 釣谷剛宏¹, 宇高勝之², 鈴木正敏^{1,2}

KDDI Research¹, Waseda Univ.², ◯Hideaki Tanaka¹, Takashi Kan¹, Shota Ishimura¹, Hidenori Takahashi¹,

Takehiro Tsuritani¹, Katsuyuki Utaka², and Masatoshi Suzuki^{1,2}

E-mail: hk-tanaka@kddi.com

【はじめに】

消費電力の少ない AI モデルとしてリザーバーコンピューティング (RC) が注目され、中でも光を使った物理 RC は速度、消費電力の点で期待されている^[1-3]。最近、渦巻き状のマルチモード導波路 (MMW、実装面積=2×2 mm²) を用い、良好なカオス予測性能 (正規化平均二乗誤差 (NMSE)=0.039@1 波長) が得られることが報告された^[3]。本稿では蛇行状の MMW を採用して RC の小実装面積化を図り、そのカオス予測性能を評価したことを報告する。

【RC チップ設計】

SOI 基板 (シリコン層厚=220nm) に形成された上部クラッドが SiO₂ の幅 0.44μm のシングルモード導波路 (SMW) と中央で接続された幅 50μm の蛇行状 (半径=100μm) の MMW のターンごとのモード分布を解析した (Fig.1)。3 ターン後で奇モード励起と高次モードまでのランダム励起が十分に生じることから、ターン数を 3 に設定した。

【RC チップ評価】

前項に基づき作製した RC チップ (MMW 部の実装面積=250×920μm²) を Fig.2 の測定系を用いて評価した。65GSa/s のデータ信号により駆動された

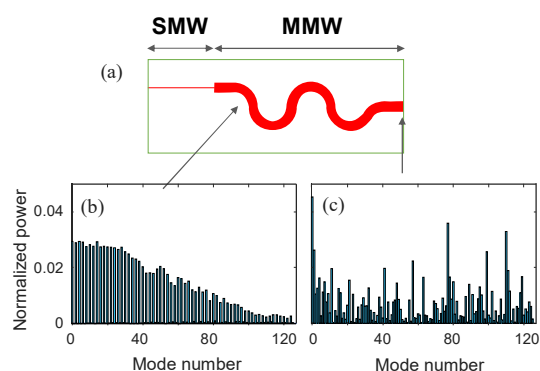


Fig. 1 (a) Design of a Si-photonic reservoir computing chip. (b) Normalized power distribution for each guided mode after a 100 μm-propagation through a straight MMW portion, and (c) that at the end of the MMW.

LiNbO₃ 変調器で波長可変光源 (波長=1.55μm) の出力光を変調し、+20dBm まで増幅した後、先球ファイバでチップの SMW に結合した。MMW の出力を先球ファイバに結合後、光増幅・光電変換して 80GSa/s で駆動したデジタルオシロスコープにより波形キャプチャした。MMW 側の先球ファイバは 0.5μm ステップで移動させて 100 点の出力波形 (100 ニューロン出力相当) を取得した。なおチップは 0.025 °C 単位で温度制御を行った。性能評価には Santa Fe カオス波形^[4]の 1 ステップ予測を適用し、最初の 3000 点は線形回帰による出力重みの学習に用い、続く 1000 点は予測性能評価に用いた。

【結果・まとめ】

上記の実験の結果、NMSE は 0.049 が得られ、従来に比べて実装面積を大幅に小面積化した蛇行状のマルチモード導波路を使った RC チップでも、カオス予測性能が従来並みに得られることを示せた。

【参考文献】

- [1] Y. Paquot et al., Proc. SPIE 7728, p.77280B (2010).
- [2] G. Van der Sande et al., Nanophotonics, vol.6, p.561 (2017).
- [3] S. Sunada et al., Optica, vol.8, p.1388 (2021).
- [4] A. Weigend et al., in IEEE Int. Conf. on Neural Networks, vol.3, p.1786 (1993).

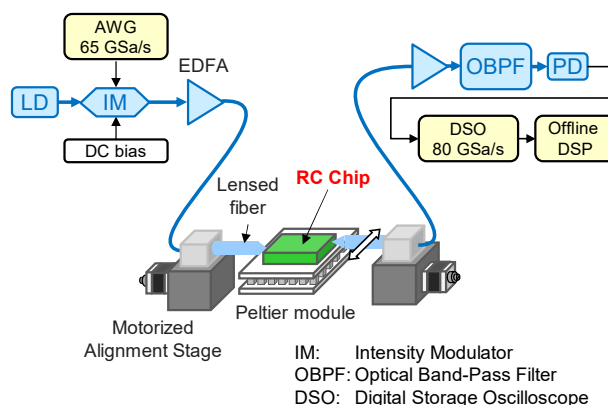


Fig. 2 Experimental setup for the reservoir computing performance test.

サイバーフィジカルシステムに基づく量子ドットネットワークの推定

Estimation of a quantum dot network based on cyber-physical system

阪大院情, °山内 一輝, 下村 優, 谷田 純

Osaka Univ. °Kazuki Yamanouchi, Suguru Shimomura, Jun Tanida

E-mail: k-yamanouchi@ist.osaka-u.ac.jp

多数の量子ドット (QD) からなる量子ドットネットワーク (QDN) は, 構造に応じた多段階のフェルスター共鳴エネルギー移動 (FRET) により多様な蛍光応答を示し, 情報処理デバイスなどへの応用が期待されている¹⁾. しかし, QDN の観察には電子顕微鏡やストリークカメラなど大掛かりな計測が必要であり, また構造に依存する蛍光応答メカニズムの解析も容易ではない. そのため, 今後の応用に向けて QDN 構造と蛍光応答の関係を簡便に推定する手法の開発が望まれる. 本研究では, 情報技術におけるサイバーフィジカルシステム (CPS) の手法を計測技術に適用した QDN 構造推定法を考案し, 蛍光応答信号から QDN 推定する新たな計測手法の検討を行った.

Fig. 1 に CPS に基づく QDN 構造推定の概念を示す. 実空間の QDN に対する計測とそのデジタルツインに対するデータ分析の繰り返しにより精密な構造推定を実現する. QDN モデルとして, 観測領域に分散する有限個 QD を想定し, それらの空間座標集合として記述する. 観測領域に対して異なる波長の励起光を照射し, 蛍光信号の時間応答より QDN 構造を推定する.

Fig. 2 に構造推定の手続きを示す. ネットワークを構成する各 QD のエネルギー変化はレート方程式 (式(1)) で記述できる. レート方程式をもとに, 各励起波長に対する蛍光強度の時間変化 $f(t, \lambda)$ を式(2)で表した. 式(2)中のパラメータ α, β は FRET 速度定数の和により決まり, QD 間距離を反映している. 式(2)を用いた実験値へのフィッティングにより α, β を求める. 各 QD の初期座標から計算される α, β との二乗誤差を基本に式(3)の損失関数を定義した. 損失関数が最小となるよう, Adam optimizer を用いて各 QD の空間座標の更新を繰り返し, QDN 構造を推定した.

Fig. 3 に 2 種類の QD, 各 30 個からなる QDN の推定構造と一部の拡大図を示す. 推定された構造では, FRET が発生する密な QD 群が FRET を生じない距離で分散し, FRET が生じる QD 群は全体の約 75%であった. ここで, FRET が生じない QD の空間配置には任意性があることに注意を要する. 推定構造から計算される推定時間応答と実験値との MSE は 1.14×10^{-3} であった. これより, CPS に基づく QDN 構造推定手法として有意な結果が得られることを確認した.

本研究は JSPS 科研費 (JP20H02657, JP20H05890) と JST CREST (JPMJCR18K2) の助成を受けた.

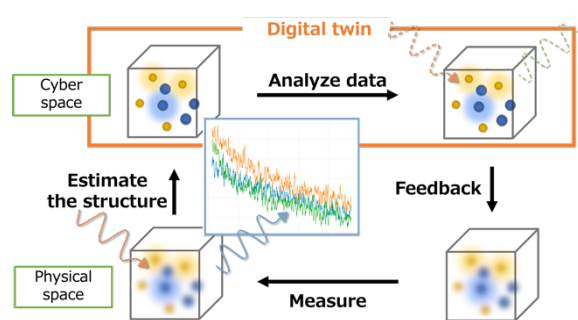


Fig. 1 Structure estimation method based on CPS

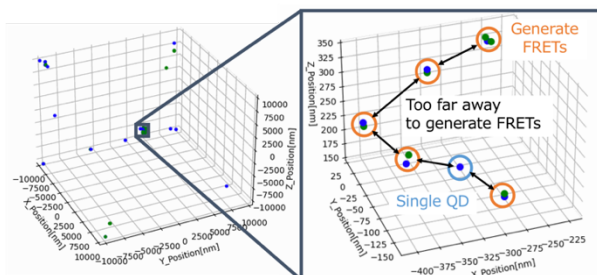


Fig. 3 Estimated a structure of QDN

参考文献

- 1) S. Shimomura, et al., *Optical Review*, **27**(2), 264-269, 2020.

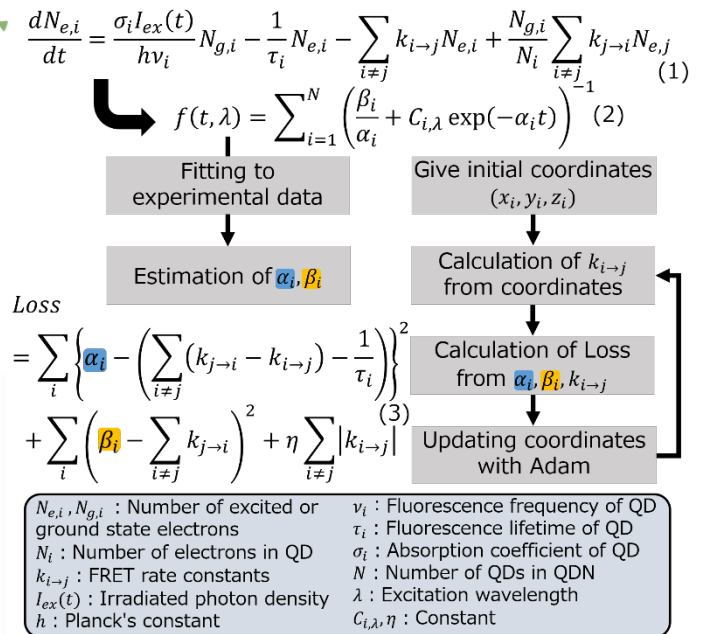


Fig. 2 Procedure of structure estimation

強度輸送方程式と反復位相回復法を組み合わせた 蛍光ビーズの奥行計測

Depth Measurements of Fluorescent Beads by Combination of Transport of Intensity Equation and Iterative Phase Retrieval Method

○(D1)松田汐利^{1,2}, 米田成^{1,3}, Manoj Kumar^{1,3}, 的場修^{1,3}

神戸大院シス情報¹, 学振特別研究員 DC², 神戸大 OaSIS³

○S. Matsuda^{1,2}, N. Yoneda^{1,3}, M. Kumar^{1,3}, O. Matoba^{1,3}

Grad. Sch. System Informatics, Kobe Univ.¹, JSPS Research Fellow DC², OaSIS, Kobe Univ.³

E-mail: 214x501x@stu.kobe-u.ac.jp

近年、光を用いた蛍光バイオイメージング技術の研究が進んでいる。特に脳神経細胞の応答を調べるためには、高速かつ奥行方向に分布する複数の神経細胞活動を、蛍光を介して観察する高速3次元蛍光イメージング技術の開発が求められている。高速3次元蛍光イメージングを実現する方法として、強度輸送方程式を用いて、微小蛍光体から発した蛍光の広がった光波（低コヒーレンス光）の複素振幅分布計測と光波伝搬計算を組み合わせた方法が提案されている[1]。さらに、この方法を散乱透視イメージングに適用する研究が進められている[2]。得られた複素振幅分布に逆伝搬計算およびフーリエスペクトルに反復位相回復法を適用することで、散乱画像から元の物体の強度分布を取得可能であることが示されている[2]。しかし、散乱画像から元の物体の奥行を計測可能であるかは明らかにされていない。

本研究では、奥行方向に移動可能な蛍光ビーズを用いて、上述の方法の奥行計測可能性を検討した。具体的には、拡散板の位置を固定し、蛍光ビーズと拡散板の距離を変化させたときに、ビーズの奥行位置を決定できるかを調べた。実験では、蛍光ビーズ（直径 10 μm 、中心波長 560 nm）と拡散角 1 度の拡散板を用いた。拡散板がある場合での蛍光ビーズの劣化した画像が得られる結像の状態を基準として蛍光ビーズの奥行位置をそれぞれ 5 μm 、10 μm 、15 μm ずらした。強度輸送方程式を解くために用いる、奥行方向にずらした位置での複数枚の強度画像の取得は、可変焦点レンズを用いて実施した。実験結果を Fig. 1. に示す。Fig. 1. における縦軸は再構成された蛍光ビーズの強度分布の半値全幅 FWHM、横軸は伝搬計算の距離、凡例は焦点面からずらした位置を示し、黒の実線は散乱体なしかつ結像面における蛍光ビーズの FWHM を示す。蛍光ビーズの三つの位置について、ずらした距離と同じ伝搬距離で、黒の実線と交差していることが観察できる。すなわち、提案手法を用いて、散乱体を通した蛍光ビーズの奥行を測定できるといえる。

謝辞: 本研究の一部は科研費 23KJ1570, 20H05886, 21H04663, 21K18724 の助成を受けて実施したものである。

[1] S.K. Rajput, *et al.* J. Biomed. Opt. **25**, 032004 (2020).

[2] S. Matsuda, *et al.* OPIC OPTICS & PHOTONICS International Congress 2023, BISC6-03 (2023).

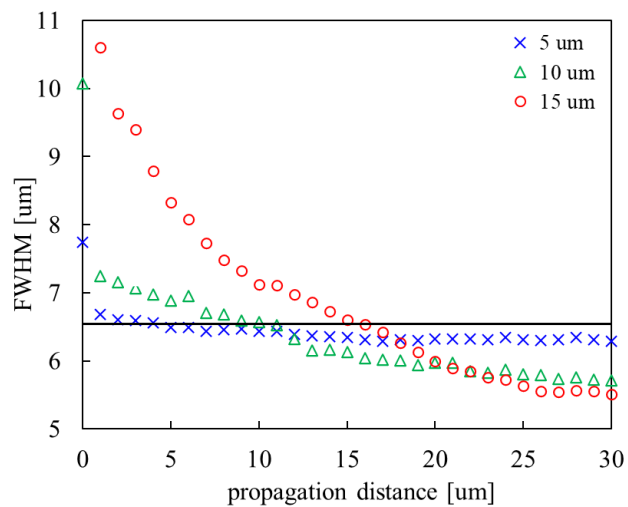


Fig. 1. FWHM of fluorescent beads after inverse propagation and phase recovery.

強度輸送方程式を用いた光学系の収差計測

Aberration measurement in optical setup based on transport of intensity equation

○粕田 修平 早崎 芳夫 長谷川 智士
Shuhei Kasuda Yoshio Hayasaki Satoshi Hasegawa

宇都宮大学 オプティクス教育研究センター
Center for Optical Research and Education (CORE), Utsunomiya University

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

1. はじめに

本研究では、高精度なレーザー加工の実現を目的として、光学系に存在する光学収差の補正を行なう。その収差計測に必要な定量位相イメージングとして、光学系が簡便であり特別な素子を必要としない強度輸送方程式を用いた。

2. 強度輸送方程式

強度輸送方程式は、近軸近似にもとづき、任意の光軸方向 z における光波の位相 $\phi(x, y)$ と強度分布 $I(x, y)$ の光軸方向微分を関連付ける偏微分方程式であり、以下の記述される。

$$\phi(x, y; z) = -\frac{2\pi}{\lambda} \text{IFT} \left[W(\mu, \nu) \text{FT} \left[\nabla_{\perp} \cdot \frac{1}{I(x, y; z)} \right] \right] \quad (1)$$

$$\nabla_{\perp} \text{IFT} \left[W(\mu, \nu) \text{FT} \left[\frac{\partial I(x, y; z)}{\partial z} \right] \right] .$$

ここで、 λ は光源の波長、 W は撮像素子の画素サイズと画素数で決まる定数、 (μ, ν) は空間周波数面での座標、FT と IFT は、それぞれ高速フーリエ変換と逆変換の演算子である。また、以下の中心差分近似

$$\frac{\partial I(x, y; z)}{\partial z} \approx \frac{I(x, y; z + \Delta z) - I(x, y; z - \Delta z)}{2\Delta z} \quad (2)$$

を用いて $\partial I(x, y; z) / \partial z$ の推定を行う。図1は、強度輸送方程式を用いた定量位相イメージングの概要を示す。物体から回折した光波の任意の光軸 z における強度分布 $I(x, y; z)$ がイメージセンサーで取得される。加えて、イメージセンサーを光軸方向に移動させて得

られた $I(x, y; -\Delta z)$ と $I(x, y; +\Delta z)$ をもとに、式(1)を用いて位相分布 $\phi(x, y; z)$ が得られる。

$$I(x, y; z - \Delta z) \quad I(x, y; z) \quad I(x, y; z + \Delta z)$$

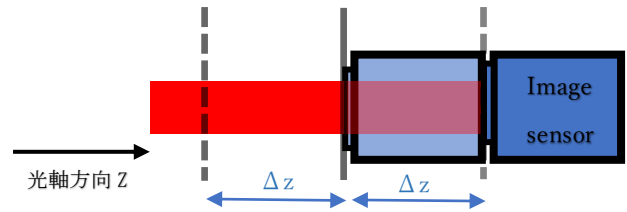


図1. 強度輸送方程式を用いた位相イメージングの概要。

3. 実験

強度分布にガウシアン分布、位相分布にフレネルレンズ(焦点距離 400mm)を定義し、角スペクトル法により $z \pm \Delta z$ 位置でのデフォーカス強度画像 $I(x, y; z \pm \Delta z)$ とインフォーカス像 $I(x, y; z)$ をシミュレーションにより求めた。その後、強度輸送方程式を用いて位相分布を求めた。結果より、シミュレーションにおいて正しく動作することを確認した。

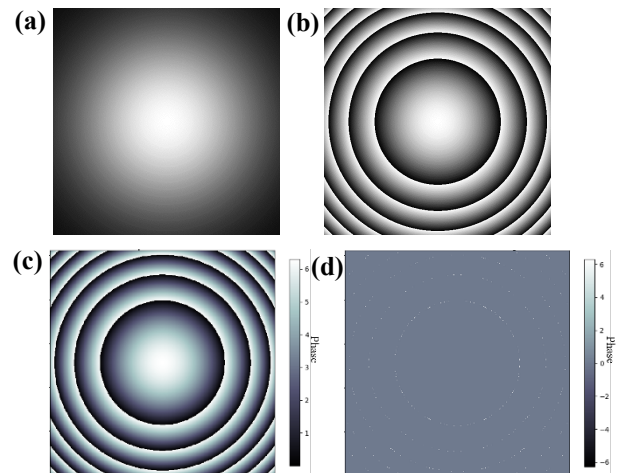


図2 定義した物体の(a)強度分布と(b)位相分布. (c)強度輸送方程式により得られた位相分布と(d)その位相誤差。

単一カメラを用いた幾何学パターンマーカの位置と姿勢の検出

Position and Posture Detection of Geometric Pattern Marker by Using a Single Camera

宇大光工学¹, 宇大 CORE² ○ 茨田 大輔^{1,2}

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

○Daisuke Barada^{1,2}

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

2019年に発生した新型コロナウイルス感染症 (COVID-19) の対策により, 教育機関における授業がオンラインでも行われるようになり, また, 企業においてリモートワークが増加した. その中でオンラインツールの有用性が示され, COVID-19の問題が収束後も一定の場面で活用されることが予想される. 本研究では, 仮想空間における実習型授業の実施など, よりオンライン活用の幅を広げることを目的とし, 特別な装置を用いずに仮想空間へアクセスする手法について検討している. 一般的に, 動きを詳細に検出しようとするほど, 特別な装置や環境が必要となる [1] が, これまでの研究で, 単一の Web カメラと縞パターンによるマーカのみで位置と姿勢の変化を検出する方法を提案した [2]. しかし, 一般的な Web カメラでは, 動きが速いと縞のコントラストが悪くなるため, 検出ができなかった. そこで本研究では, より単純な幾何学パターンを用いたマーカを検討する.

本稿の例では, 幾何学パターンとして黒く塗りつぶされた正方形を用いた. カメラの正面から見て正方形に見えても, 任意の姿勢にして撮影すると, カメラ上では任意の四角形に見える (Fig. 1). しかし, 四角形の辺に沿った直線の式および頂点を検出できれば, これまでの手法により位置と姿勢が算出できる. 本研究の手法では, 四角形の辺に沿った直線を Haar フィルタリングおよび最小二乗法によって求め, 辺の交点より頂点を算出した.

Fig. 2 に, A4 紙に印刷した一辺 20mm の正方形を用いた場合の実験結果例を示す. この例では, 正方形の位置と姿勢に応じた直方体を表



Fig. 1: Tilted square marker

示するようにしている. 直方体の面と紙の面が平行に見え, さらに動きにも追従する結果も得られているため, 位置と姿勢の検出に成功していると考えられる. この例では幾何学パターンとして正方形を用いているが, 原理的には幾何学パターンは正方形に限定されず, 頂点間の距離がわかっている幾何学パターンの位置と姿勢の検出が可能である. 仮想空間へのアクセスを考えると, 実際にはマーカレスで手の動きなどを検出することが望ましいので, 今後は, 関節などの特徴点間の実寸を計測するキャリブレーションの手段として, この方法を用いるとことを検討する.

[1] M. Menolotto *et.al.*, *Sensors* **2020**, 5687 (2020)

[2] 茨田, 第 83 回応用物理学会秋季学術講演会 講演予稿集, 03-316 (2022)

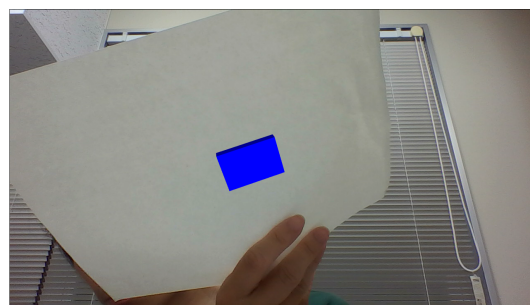


Fig. 2: Experimental result of position and posture detection

制約条件を考慮した反復法による光回折トモグラフィーの検討

Investigation of Optical Diffraction Tomography using Iterative Methods Considering Constraint Condition

近畿大学大学院総合理工学研究科 (M2) 小松 智昭, 吉田 周平

Kindai Univ., Graduate School of Science and Engineering, Tomoaki Komatsu, Shuhei Yoshida

E-mail: 2233340488x@kindai.ac.jp

1. 序論

光回折トモグラフィー(ODT)は試料の屈折率(RI)分布を3次的に測定する技術であり、生体組織を始めとした透明試料の可視化に用いられている。ODTは一般に様々な照明角度で得られた物体の複数の干渉画像の測定値から屈折率を再構成する。

本研究では、ODTの精度向上を目的として、制約条件を取り入れた反復再構成アルゴリズムを数値的に検討した。

2. 原理

シミュレーションとして屈折率 1.336 の媒質中に直径 $3 \mu\text{m}$ 、屈折率 1.461 のビーズを配置し、異なる制約の種類に基づく屈折率の比較を行った。

本研究では、以下の3つの制約条件を用いた。非負制約(NN)は散乱ポテンシャルが非負であるという制約、非吸収制約(NA)は散乱ポテンシャルの虚部を0とする制約である。サポート制約(S)はサポート領域の外側にある場合には散乱ポテンシャルを0にする。実空間での制約条件を上記の条件、周波数空間での制約条件を散乱波のスペクトルとして、反復計算により屈折率を再構成する[1]。Fig.1に非負制約、非吸収制約、サポート制約これらの制約条件の組み合わせによる反復回数ごとの再構成された屈折率の精度を示す。

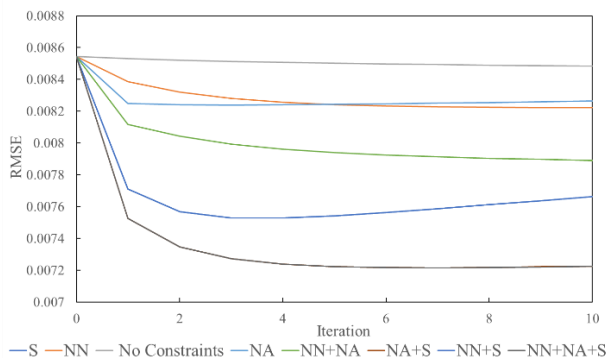


Fig.1 Root mean squared error (RMSE) of each reconstruction scheme

すべての制約条件を適用した場合の RMSE は

0.72 となった。

3. 結果および考察

Fig.2 に試料に対してすべての制約条件を適用した際の屈折率分布と周波数スペクトルの結果を示す。Fig.2 (a)は制約条件を適用する前の画像、(b)は制約条件を適用した後の画像である。

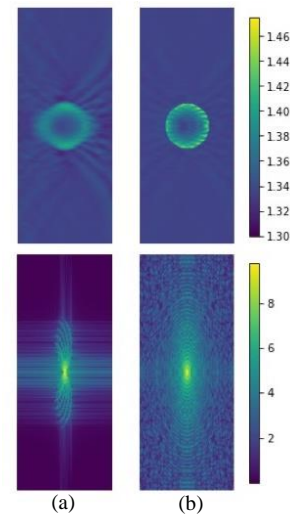


Fig.2 Reconstructed RI distribution and frequency spectrum

Fig.2 (a)に示した再構成画像は屈折率が実際の値よりも小さくなることが示されている。これは欠落角度があるために周波数空間をすべて埋めることができないためである。(b)反復制約アルゴリズムが適用された結果、再構成された画像の品質が向上していることがわかる。(a)に対して(b)は周波数空間ではリング状のパターンが現れ、これは欠落した周波数領域に対応する情報が復元されていることを示している。

参考文献

- [1] Yongjin Sung, Wonshik Choi, Christopher Fang-Yen, Kamran Badizadegan, Ramachandra R. Dasari, and Michael S. Feld, "Optical diffraction tomography for high resolution live cell imaging," Opt. Express 17, 266-277 (2009)

体積ホログラフィック光学素子を用いたピクセル間クロストークの分離 Interpixel Crosstalk Separation by Using Volume Holographic Optical Element

宇大光工学¹, 宇大 CORE² ○村上海太¹, 茨田大輔^{1,2}

Opt. Eng., Utsunomiya Univ.¹, CORE, Utsunomiya Univ.², ○Kaita Murakami¹, Daisuke Barada^{1,2}

E-mail: mc226534@s.utsunomiya-u.ac.jp

1 研究背景

現在デジタル情報は増え続ける一方であり、それに伴い長期保存性、大容量、高転送速度のストレージが求められている。それらを背景に次世代の大容量光メモリとして期待されているのがホログラフィックメモリである。しかしながら、ホログラフィックメモリは実用化に至っておらず、その原因として高密度に記録するほどピクセル間クロストークノイズやページ間クロストークノイズが大きくなり、さらなる大容量化が難しいという点が挙げられる。本研究では、Fig. 1のようにホログラフィックメモリとは別の体積ホログラフィック光学素子(VHOE)を用いてピクセル間クロストークを分離する方法を検討する。

体積ホログラムは入射条件に応じて選択的に回折させる特性を有する。ピクセル間クロストークによって隣接するピクセルパターンが重なっていても、それぞれのピクセルパターンの入射の対応する回折光が分離可能であれば、結果的にピクセル間クロストークを分離できることを意味する。



Fig. 1: Proposed method

2 ピクセル間クロストーク分離実験

VHOEの作製光学系をFig. 2に示す。本研究では強い選択性を持たせる為、用いるVHOEは、波長405nmの半導体レーザーを利用し、SLMにより生成したページデータの1ピクセルから

の信号光とガルバノミラーから反射される参照光による干渉縞を厚み5mmのフォトポリマーに露光することによって作製した。その際、SLMでピクセルの位置を切り替えながら多重露光を行った。参照波の入射角は、1度ずつ変化させた。これは、ページデータの各ピクセルからの光が1度ずつ異なる別々の回折されることを意味する。

その後、SLMに表示したCGHによって、ピクセル間クロストークが生じるページデータパターンを生成し、作製したVHOEに照射した。その結果得られた回折パターンをFig. 3に示す。この結果より、回折光は隣接するピクセル間に十分な隙間ができ、分離できることがわかる。また、ページ間クロストークがある場合は、この隙間の部分に回折光が現れることが予想されるため、今後はページ間クロストークも分離可能であるか検討する。

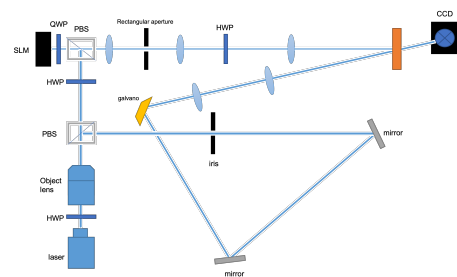


Fig. 2: Experimental setup

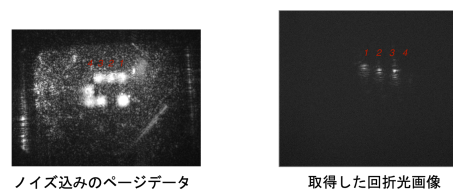


Fig. 3: Experimental result

表面型シフト多重ホログラフィックメモリーにおける ホログラムの離散化による信号再生特性への影響評価

Evaluation of the Effect of Hologram Discretization on Signal Reconstruction

Characteristics in a Shift-Multiplexing Surface Holographic Memory

東大生研¹, 宇大工², 北大電子研³ ○平山 颯紀¹, 藤村 隆史², 田中 嘉人³, 志村 努¹

IIS The Univ. of Tokyo¹, Utsunomiya Univ.², RIES Hokkaido Univ.³

○Soki Hirayama¹, Ryushi Fujimura², Yoshito Tanaka³, Tsutomu Shimura¹

E-mail: skhrym@iis.u-tokyo.ac.jp

1. 研究背景

表面型ホログラムを記録媒体とする 2 次元信号画像の記録再生システムは、情報の超高速読み出し・量産性・半永久的保存寿命といったデータストレージとしての優れた特徴を有している。われわれは表面型ホログラムのシフト多重記録を可能とする手法を考案し、時系列信号符号化を用いた新規表面型ホログラフィックメモリーシステムの実現可能性を示した。

上記システムにおける表面型シフト多重ホログラムは、実際に計算機合成ホログラムとして作製する際に位相の変調量と空間分布が離散化される。本研究では、こうしたホログラムの離散化が媒体の記録密度や再生信号の信号対ノイズ比に与える影響について評価した。

2. 評価方法

まず、本システムの記録密度 ρ に関わるパラメーターを以下に示す。

$$\rho = \frac{4}{\alpha\beta} \left(\frac{NA}{\lambda} \right)^2 \quad (1)$$

ここで、 α はナイキストサイズに対するホログラムサイズの比を表し、 β はシフト選択性の幅に対するホログラムのシフトピッチの比を表している。また、NAは開口数、 λ は波長である。

α, β が異なる条件でそれぞれシフト多重ホログラムを計算し、その際にホログラムの位相諧調数・単位セルサイズを制限した。計算され

たシフト多重ホログラムから読み出される時系列信号を数値シミュレーションによってそれぞれ計算し、その信号対ノイズ比を評価した。

3. 結果

ホログラムの位相諧調数が 2 諧調、4 諧調、8 諧調、制限なしの場合における、各 α, β に対して計算された信号対ノイズ比と記録密度の関係を Fig. 1 に示す。4 諧調以上で離散化の影響が十分小さくなることが示された。また、ホログラムの単位セルサイズが 168nm, 126nm, 84nm, 42nm, 21nm の場合における同様の結果を Fig. 2 に示す。42nm 以下（元のホログラムの最大空間周波数の 4 倍程度）で離散化の影響が十分小さくなることが示された。

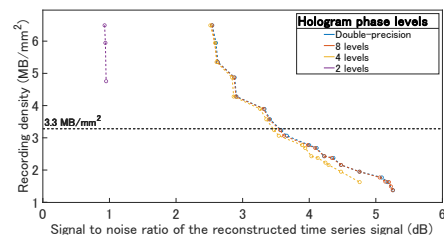


Fig 1. The relationship between the SNR and recording density for different levels of the phase modulation of the designed holograms.

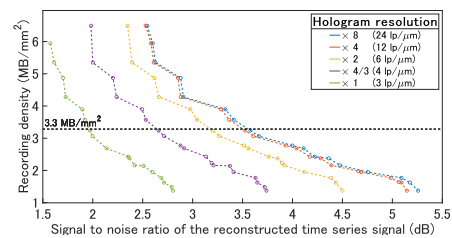


Fig 2. The relationship between the SNR and recording density for different spatial resolutions of the designed holograms.

1 km のレーザーエネルギー伝送実験による 大気擾乱ビーム伝搬シミュレーションの検証

Verification of atmospheric turbulence beam propagation simulation by 1 km laser energy transmission experiment

NTT 宇宙環境エネルギー研究所¹, 三菱重工業株式会社総合研究所²

落合夏葉¹, 鳥海陽平¹, 鈴木優紀子¹, 柏倉一斗¹, 田中徹¹,
恩田一寿², 川添浩平², 竹内良昭², 津村陽一郎²

NTT Space Environment and Energy Laboratories¹,

Research & Innovation Center, Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.²

°Natsuha Ochiai¹, Yohei Toriumi¹, Yukiko Suzuki¹, Kazuto Kashiwakura¹, Toru Tanaka¹,

Kazuhisa Onda², Kohei Kawazoe², Yoshiaki Takeuchi², Yoichiro Tsumura²

E-mail: natsuha.ochiai@ntt.com

近年、レーザー光によるエネルギー伝送が注目を集めている[1,2]。屋外のエネルギー伝送では大気擾乱の影響が大きいため、システム設計において擾乱の予測が必要である。前回、100mの伝送実験におけるシミュレーションの検証について報告した(21p-C205-3)。本研究では、1kmの伝送実験を実施し、大気擾乱下でのビーム伝搬シミュレーションの検証を行ったので報告する。

Fig.1 (a)に実験系を示す。Gaussian ビームと Laguerre-Gaussian(LG)ビームを用意し、自由空間中を 1 km 伝送させ、受光パネルにおけるビームパターンを計測した。LG ビーム(LG(3,1))は回折光学素子を用いて整形した。(LG(n,m) : ラジアル次数 n、アジマス次数 m) また、長距離伝送では球面収差の影響が大きくなり、シミュレーションの検証においてノイズとなるため、球面収差が小さくなるようにビーム径や光学素子の設計を行った。シミュレーションにはスプリットステップビーム伝搬法[3]を用いて大気擾乱の効果を取り入れた。シミュレーションによる解析で求めた伝搬後のビームパターンを Fig.1 (b), (c)、実験で得られたビームパターンを Fig.1 (d), (e)に示す。Gaussian ビーム、LG ビームともに形状が定性的に一致している。ビーム径については、Gaussian ビームは解析で 304 mm、実験で 274 mm、LG ビームは解析で 310 mm、実験で 336 mm であり、10%程度の差であった。また、ビームの重心ずれについて、Gaussian ビームは解析で 12 mm、実験で 8 mm、LG ビームは解析で 13 mm、実験で 10 mm であり、ビーム径で規格化したところ2%の差であった。

以上より、ビーム形状やビーム径、重心ずれについてシミュレーションと実験で概ね一致しており、エネルギー伝送システム的设计において大気擾乱の効果を取り入れたビーム伝搬シミュレーションが有効であることが確認できた。

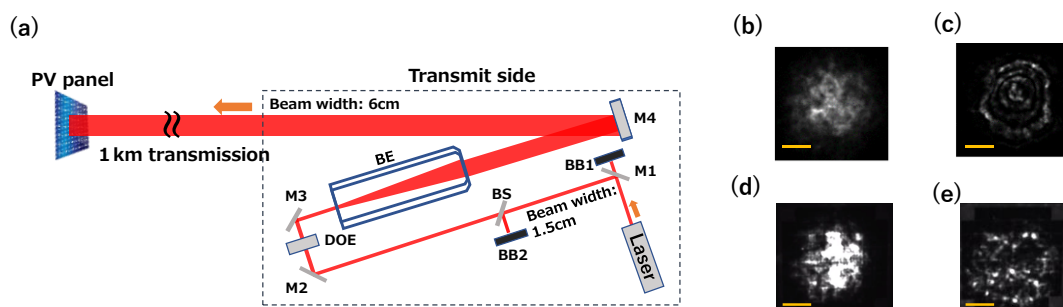


Fig1. (a) Schematic of beam propagation optics with beam shaping. M1-M3: Mirrors, M4: Direction-control mirror. BB1, BB2: Beam blocks. DOE: Diffractive optical element. BE: Beam expander. PV: Photovoltaic. (b), (c) Calculated beam profiles after 1 km propagation for Gaussian and LG(3,1). (d), (e) Experimental beam profiles for Gaussian and LG(3,1). Scale bar (yellow line): 100 mm.

参考文献

- [1] K. Jin *et al.*, "Wireless Laser Power Transmission: A Review of Recent Progress," IEEE Trans. Power Electron. **34**, 4 (2019).
- [2] J. Ding *et al.*, "Advanced Progress of Optical Wireless Technologies for Power Industry: An Overview" Appl. Sci. **10**, 18 (2020).
- [3] J. D. Schmidt, "Numerical Simulation of Optical Wave Propagation with Examples in MATLAB," SPIE PRESS BOOK (2010)

 CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.3] Code-sharing Session of 3.4 & 3.13

[21a-B204-1~7] CS.3 Code-sharing Session of 3.4 & 3.13

Katsuhiko Mikami(Kindai Univ.), Furuse Hiroaki(NIMS)

Thu. Sep 21, 2023 9:00 AM - 11:00 AM B204 (Civic Auditorium)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

-
- [21a-B204-1] Preparation of polarization maintaining tellurite glass optical fiber
 ○(M2)Keita Takahata¹, Asuka Nakatani¹, Jonathan de Clermont-Gallerande¹, Takenobu Suzuki¹, Yasutake Ohishi¹ (1.Toyota Tech. Inst.)
 9:00 AM - 9:15 AM
- [21a-B204-2] Atomic-scale analysis of room temperature bond interface between LiNbO₃/SiO₂ and demonstration of LNOI/Si ultra-high-speed optical modulator
 ○Seigo Murakami¹, Moritomo Takeru¹, Yamaguchi Yuya², Sakamoto Takahide³, Takigawa Ryo¹ (1.Kyushu Univ., 2.NICT, 3.Tokyo Metropolitan Univ.)
 9:15 AM - 9:30 AM
- △[21a-B204-3] Wavelength dependence of Verdet constant of Er₂O₃ Ceramics
 ○Hikaru Kumai¹, Hiroaki Furuse², Hiyori Uehara^{1,3}, Masato Ota^{1,3}, Ryo Yasuhara^{1,3} (1.SOKENDAI, 2.NIMS, 3.NIFS)
 9:30 AM - 9:45 AM
- [21a-B204-4] Effective Thermal Conductivity of Optical Composites by Surface Activated Bonding
 ○Yoichi Sato^{1,2}, Arvydas Kausas^{1,2}, Takunori Taira^{1,2} (1.RIKEN, 2.IMS)
 10:00 AM - 10:15 AM
- [21a-B204-5] Reducing the Refractive Index of PDMS as an Optical Medium Using Nano-Foaming
 ○Yushi Yoshioka¹, Daichi Takagoshi¹, Harunobu Takeda¹, Riku Matsuzaki¹, Hiroaki Yoshioka¹, Yuji Oki¹ (1.Kyushu Univ.)
 10:15 AM - 10:30 AM
- [21a-B204-6] Accurate measurements of second-order nonlinear-optical coefficients of UV wavelength-conversion material LaBGeO₅ (II)
 ○Syuji Sato¹, Masaki Yamanobe¹, Shintaro Ishikawa¹, Ichiro Shoji¹ (1.Chuo Univ.)
 10:30 AM - 10:45 AM
- △[21a-B204-7] Survey of laser induced damage onset by occurred vibration
 ○Ryouichi Akiyoshi¹, Katsuhiko Mikami¹, Yasuhiro Miyasaka² (1.kindai Univ, 2.QST KPSI)
 10:45 AM - 11:00 AM

テルライト偏波保持光ファイバの作製

Preparation of polarization maintaining tellurite glass optical fibers

豊田工大 ○(M2)高畑 慶大, 中谷 明日佳,

Jonathan de Clermont-Gallerande, 鈴木 健伸, 大石 泰丈

Toyota Tech. Inst. Keita Takahata, Asuka Nakatani,

Jonathan de Clermont-Gallerande, Takenobu Suzuki, and Yasutake Ohishi

E-mail: sd22417@toyota-ti.ac.jp

1. 緒言

波長 2.5 - 25 μm の領域は中赤外領域と呼ばれ、水や二酸化炭素などの分子結合固有の吸収が多く存在している。そのため、中赤外領域は吸収スペクトルを測定することで物質の特定や検出が可能な波長領域である。したがって、医療・産業・先端計測分野での応用が期待されており、分光計測の実現に向けた中赤外広帯域光発生の研究が進められている。広帯域光の一つに、SC 光が挙げられる。SC 光は非線形光学効果によって発生するため、高い非線形屈折率を示すガラス材料が求められる。また、光ファイバの構造を制御することによって高コヒーレント SC 光が発生することが報告されている[1]。偏波制御された中赤外 SC 光は光干渉断層撮影など干渉を用いた応用が期待されている。カルコゲナイド光ファイバによって、中赤外 SC 光の発生が報告されている[2,3]。一方で、カルコゲナイド光ファイバに入射する波長が 3 μm より長波長である必要があり、小型の励起光源が使用できないという課題がある。そこで本研究では、波長が 2 μm のコンパクトな励起光源が使用できるテルライト光ファイバによって偏波制御された中赤外 SC 光を発生させることを目的としている。

2. 扁平コア光ファイバの作製

本研究では高い偏波保持特性を得るために、扁平コアの光ファイバを作製する。コアに $78\text{TeO}_2\text{-}7\text{ZnO-}12\text{Li}_2\text{O-}3\text{Bi}_2\text{O}_3(\text{mol}\%)$ 、クラッドに $67\text{TeO}_2\text{-}18\text{ZnO-}12\text{K}_2\text{O-}3\text{Bi}_2\text{O}_3(\text{mol}\%)$ のガラスを選択した。この材料の組み合わせは軟化点の差が 6.4°C と小さくファイバ作製が可能であり、波長 1.54 μm で屈折率差が 0.12 と高く、扁平コアにすることにより高い偏波保持特性が期待できる。

3. 実験結果

Fig. 1 に作製した扁平コア光ファイバの光学顕微鏡による断面画像を示す。Fig. 1 に示すように、コアが扁平型に維持されている。また、この構造はシミュレーションによって、波長 1.54 μm で複屈折率が 6.9×10^{-5} であることが分かった。今後はガラスの透過域全体における屈折率を測定し、高い偏波保持特性かつ高コヒーレント SC 光が発生する構造をシミュレーションにより解明し、光ファイバを作製し、評価を行う。

参考文献

[1] J. M. Dudley *et al.*, Rev. Mod. Phys. **78**, (2006) 1135.

[2] A. N. Ghosh *et al.*, J. Phys. Photon. **1**, (2019) 044003.

[3] T. H. Tuan *et al.*, Opt. Express **30**, (2022) 25433.

本研究は [JSPS 科研費 JP21H01399](#) の助成を受けたものである。

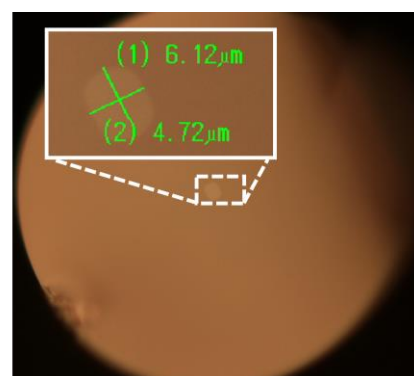


Fig. 1. Optical microscope cross sectional image of a fabricated optical fiber.

LiNbO₃/SiO₂ 常温接合界面の原子スケール解析と LiNbO₃ on Insulator/Si 超高速光変調器の実証

Atomic-scale analysis of room temperature bond interface between LiNbO₃/SiO₂ and
demonstration of LNOI/Si ultra-high-speed optical modulator

○村上誠悟¹, 森友健留¹, 山口祐也², 坂本高秀³, 多喜川良¹

九州大学¹, 情報通信研究機構², 東京都立大学³

○Seigo Murakami¹, Takeru Moritomo¹, Yuya Yamaguchi², Takahide Sakamoto³, Ryo Takigawa¹

Kyushu Univ.¹, NICT², Tokyo Metropolitan Univ.³

E-mail: murakami.seigo.015@s.kyushu-u.ac.jp

6G 以降のエクサスケール情報通信に向けた課題として、超高速光変調器の低消費電力化・小型化がある。近年、これを克服するために強い光閉じ込め効果及び効率の良い電界印加を可能とする薄膜 LiNbO₃ on Insulator(LNOI)構造が注目されている^[1]。我々は、この LNOI 光変調器と LSI、MEMS、Si フォトニクスなどの融合や製造コスト低減を見据えて LNOI と Si の大口径ウエハレベルヘテロジニアス集積を目指している。

従来のプラズマ活性化親水化接合では、一般に 200 °C 以上のアニールを要するため、熱膨張係数が一桁異なる LN ウエハと Si ウエハの接合には適用困難である。

我々は、光通信波長帯で透明な活性 Si 原子中間層を利用した光学結晶の常温接合技術を開発している^[1]。本研究では LN と熱酸化 Si(SiO₂) の常温ウエハ接合に適用し、常温形成されたナノ接合界面近傍の原子の挙動について詳細な解析を行うとともに、薄膜 LNOI/Si 超高速光変調器の実証を行う。

図 1 は LN/SiO₂ 接合界面の TEM 観察結果から、LN 結晶にダメージが入ることなく原子レベルでの密着が確認され、強固な接合強度が得られた (引張り強度: 30MPa 以上)。接合界面近傍の EDX 分析、剥離面の XPS 等の各種分析手法により得られた詳細の結果については、当日の発表で報告する。また、図 2 に、得られた薄膜 LNOI/Si ウエハ上に形成された進行波型光変調器アレイ、図 3 に当該変調器を用いて 100 GHz の電気光学変調を実証した結果を示す。

以上より、本常温ウエハ接合法による Si 上への LNOI 光変調器の集積化は成功し、次世代の異種材料

集積フォトニクス製造技術としての可能性を示した。

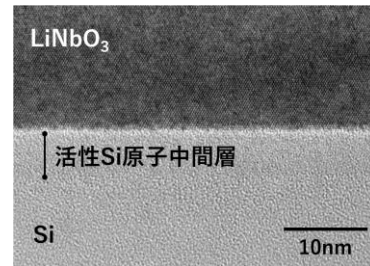


図1 LiNbO₃/SiO₂ 常温接合界面の断面 TEM 観察

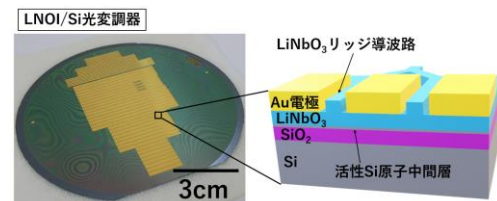


図2 常温接合により作製した LNOI/Si 光変調器アレイウエハ

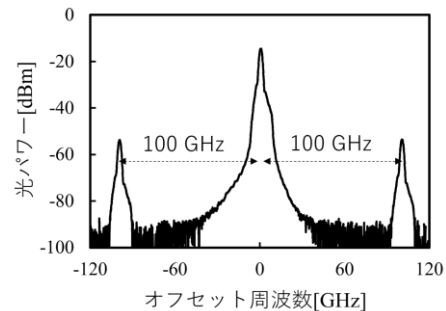


図3 LNOI/Si 光変調器を用いて 100 GHz 光変調した時の光スペクトル

謝辞 本研究の一部は、JST CREST (JPMJCR2103) により支援されて行われた。

参考文献

1) K. Watanabe et al., Applied Surface Science, 620, 156666 (2023).

Er₂O₃ セラミックスにおけるヴェルデ定数の波長依存性

Wavelength dependence of Verdet constant of Er₂O₃ Ceramics

総研大¹, NIMS², NIFS³ °熊井 光¹, 古瀬 裕章², 上原 日和^{1,3}, 太田 雅人^{1,3}, 安原 亮^{1,3}

SOKENDAI¹, NIMS², NIFS³, °Hikaru Kumai¹, Hiroaki Furuse², Hiyori Uehara^{1,3}, Masato Ota^{1,3}, Ryo Yasuhara^{1,3}

E-mail: kumai.hikaru@nifs.ac.jp

ファラデー効果は、高強度レーザーシステムに欠かせない光アイソレータや電力系統用の光電流センサなどに応用されている。磁気光学デバイスの小型化・高性能化には、大きなファラデー回転角をもち、温度変化によるヴェルデ定数変化の小さい材料の探索が重要である。Er₂O₃ は融点が高く単結晶成長にコストを要するため、透明なセラミックスの合成が研究されてきた。これまでに、ランタンを添加し自己伝播型高温合成で作製された透明な共晶セラミックス(Er_{0.95}La_{0.05})₂O₃ が報告された一方で、Er₂O₃ の透明セラミックスは未だ実現されていない[1]。一般に、常磁性体のヴェルデ定数は、活性イオンの n_{eff}^2/g (n_{eff} :有効ボーア磁子数, g :ランダウの g 因子)と体積濃度に比例する[2]。Er₂O₃ は、Tb や Dy, Ho のように大きな n_{eff}^2/g 値をもつ活性イオン Er を含み、Er³⁺の濃度が(Er_{0.95}La_{0.05})₂O₃ に比べて高いため、さらに大きなファラデー回転角が期待される。

本研究では、放電プラズマ焼結(SPS)[3]によるEr₂O₃の透明セラミックスの作製に初めて成功した。また、室温においてEr₂O₃のヴェルデ定数の波長依存性と透過率を評価した。

図1にヴェルデ定数の測定実験系を示す[4]。スーパーコンティニウム光源ならびに He-Ne レーザーから出射された光は、1つ目の偏光子(Pol.1), Er₂O₃ サンプル, 回転ステージに取り付けられた半波長板(HWP), 2つ目の偏光子(Pol.2)を通り分光計で計測される。半波長板を微小ステップずつ回転させつつ、各角度の光強度スペクトルを計測し、外部磁場を印加した場合と印加しない場合の位相差より波長 600 ~ 1050 nm のヴェルデ定数を評価した。

図2に、室温におけるEr₂O₃のヴェルデ定数の波長依存性と透過率スペクトルを示す。波長 980 nm, 800 nm, 670 nm に Er³⁺の基底状態吸収が確認された。また、波長が短くなるにつれて、透過率が低くなっており、散乱の影響がみられた。ヴェルデ定数の絶対値は、波長が短くなるほど大きくなり、波長の2乗に反比例するという単一電子遷移モデルで説明される特性[2]に沿う傾向がみられた。波長 633 nm にお

けるヴェルデ定数は-77.1 rad/(Tm)であり、これまでに報告されている(Er_{0.95}La_{0.05})₂O₃ に対して1.2倍大きかった[1]。

今回、SPSにより作製したEr₂O₃セラミックスの室温におけるヴェルデ定数の波長依存性と透過率を測定した。本結果より、Er₂O₃セラミックスが比較的大きなヴェルデ定数を有し、透明化技術の確立により、優位性の高いファラデー材料としての利用可能性が示唆された。

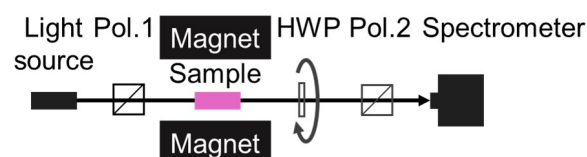


Figure 1. Experimental setup of Verdet constant measurement at room temperature

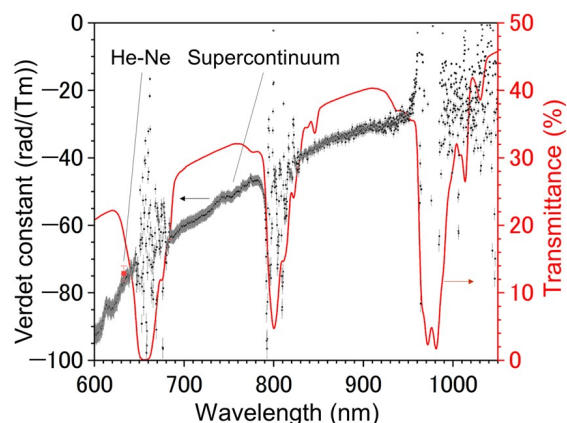


Figure 2. The wavelength dependence of Verdet constant and transmittance at room temperature

参考文献:

- [1] A. Yakovlev et al, *Opt. Mat.*, **101**, 109750 (2020).
- [2] Van Vleck et al. *Phys. Rev.* **46**, 17–32 (1934).
- [3] H. Furuse and R. Yasuhara, *Opt. Mater. Express* **7**, 827-833 (2017).
- [4] D. Vojna et al, *Appl. Sci.*, **9**(15), 3160 (2019).

表面活性接合コンポジット光学素子における実効熱伝導率

Effective Thermal Conductivity of Optical Composites by Surface Activated Bonding

理研¹, 分子研² °佐藤 庸一^{1,2}, アルヴィダス カウシャス^{1,2}, 平等 拓範^{1,2}

RIKEN¹, Inst. Mol. Sci.², °Yoichi Sato^{1,2}, Arvydas Kausas^{1,2}, Takunori Taira^{1,2}

E-mail: yoichi.sato@spring8.or.jp

【緒言】近年のレーザー装置のコビキタス化により、レーザー装置の価格・運用コスト低減とレーザー性能向上が促進されてきた。それを可能とするのがレーザー共振器の小型高出力化であるが、最大の障害となるのがレーザー媒質における発熱密度の増大である。これを解決する手法として、我々は室温下での表面活性接合によるレーザー利得媒質と透明ヒートシンクとのコンポジット素子を開発し、排熱性の大幅な向上を実現した [1]。この排熱性は媒質の熱伝導率に比例する。

コンポジット媒質の実効熱伝導率はその構造により制御される。接合面での熱抵抗が無視できる場合、厚さ L_i 、密度 ρ_i 、比熱 C_i 、熱拡散率 D_i 、熱伝導率 κ_i を有する平面基板 i ($i=1, 2$) のコンポジット媒質における接合面に垂直方向の実効熱伝導率 κ_{1+2} 、および実効熱拡散率 D_{1+2} は

$$\frac{L_1+L_2}{\kappa_{1+2}} = \frac{L_1}{\kappa_1} + \frac{L_2}{\kappa_2}, \quad (1)$$

$$\frac{(L_1+L_2)^2}{D_{1+2}} = \frac{\rho_1 C_1 L_1 + 3\rho_2 C_2 L_2}{\rho_1 C_1 L_1 + \rho_2 C_2 L_2} \frac{L_1^2}{D_1} + \frac{3\rho_1 C_1 L_1 + \rho_2 C_2 L_2}{\rho_1 C_1 L_1 + \rho_2 C_2 L_2} \frac{L_2^2}{D_2}, \quad (2)$$

で与えられる[2]。図1に利得媒質 1at.%Nd:YAG 単結晶 ($\kappa_1=10$ W/mK) およびヒートシンク c-cut サファイア単結晶 ($\kappa_2=36$ W/mK) からなるコンポジット媒質における実効熱伝導率を示す。ここで 0.5 mm 厚の YAG を厚さ 2.0 mm のサファイアで挟んだ場合、実効熱伝導率は 28 W/mK となる。

しかしながら、これまで透明誘電体結晶の表面活性接合界面における熱抵抗がどの程度となるかについての議論は無かった。今回、Nd:YAG と単結晶サファイアを表面活性接合して作成したコンポジット媒質について、フラッシュ法により熱応答特性を評価したので報告する。

【実験方法】本実験では、直径 12.7 mm の c-cut サファイア ($t=0.52$ mm)、単結晶 1at.%Nd:YAG ($t=0.59$ mm)、および 1at.%Nd:YAG セラミックス ($t=0.51$ mm) を接合して得られた 6 種の複合構造媒質実効熱拡散率をフラッシュ法 (LFA467 Hyper flash, ネット) により -5 °C ~ 205 °C の温度範囲において計測した。

【実験結果と考察】図2で示される通り、2枚の単結晶サファイアからなるコンポジット試料とサファイア単結晶との熱伝導率に有意な差は確認できず、我々の常温下での表面活性接合における接合界面での熱抵抗はほぼ無視できることが示された。また、サファイアと YAG からなる 6 種全てのコンポジット媒質において -5 °C ~ 200 °C の温度範囲で非常に再現性の高い計測結果が得られており、コンポジット化により排熱特性が自在に設計できるだけでなく、レーザーの動作温度範囲内においては接合状態が安定に維持されることも明らかとなった。詳細は当日報告する。

【謝辞】本研究は、防衛装備庁が実施する安全保障技術研究推進制度 JPJ004596 の支援を受けた。

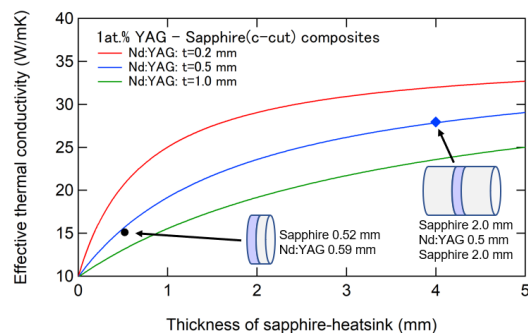


図1 YAG-サファイア複合媒質の実効熱伝導率

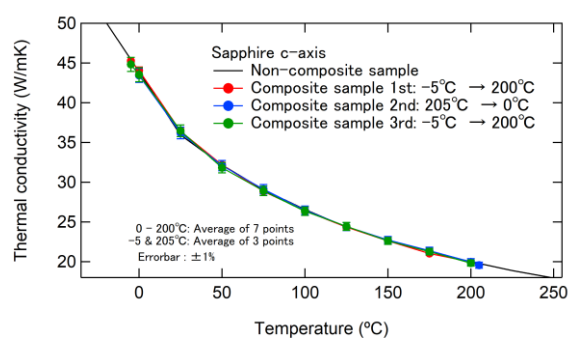


図2 単結晶サファイア複合材料の熱伝導率

[1] A. Kausas 他、第 68 回応用物理学会春季講演会、16p-Z11-5 (2021).

[2] T. Baba, JJAP 48(5), 05EB04 (2009).

ナノフォーミングによる PDMS の低屈折率化と光学特性

Reducing the Refractive Index of PDMS as an Optical Medium Using Nano-Foaming
九州大学システム情報, 吉岡 優志, 高越 大智, 竹田 晴信, 松崎 李空, 吉岡 宏晃, 興 雄司

Graduate School of Information Science and Electrical Engineering, Kyushu University, Japan,

Yushi Yoshioka, Daichi Takagoshi, Harunobu Takeda, Riku Matsuzaki, Hiroaki Yoshioka and Yuji Oki

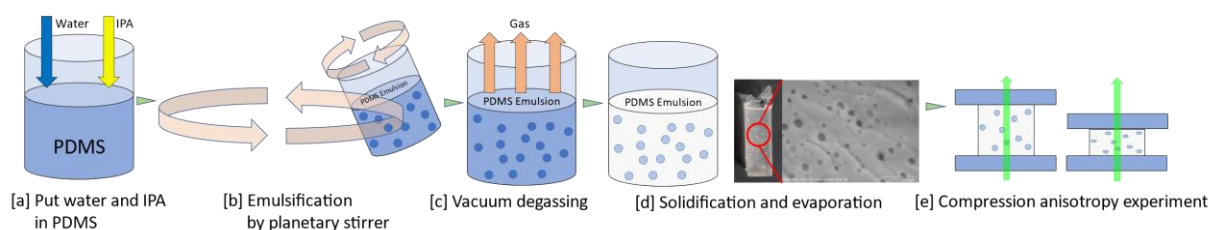
E-mail: oki@ed.kyushu-u.ac.jp

ナノポーラスで形成される多孔質媒質は低誘電率や高いガス浸透性を持つなどの特徴を有し、各材料において様々な作製手法が研究されている。我々は、低誘電率化にフッ素などを導入せず、容易かつ制御可能な低屈折率化手法として、高透明で安定なシロキサン形エラストマー (Polydimethylsiloxane: PDMS) にナノフォーミングを導入する探索・研究を行った。

図にはサブミクロンの気泡を効率よく導入できた手法として、エマルジョン法を示す。疎水性 PDMS に水 5wt.% で微細なエマルジョンを形成するため、共溶媒であるイソプロパノール[2]を加えて遊星式攪拌機で乳化し、脱泡後、付加反応で固体化する。その後をエマルジョン中の水を乾燥除去すると気泡が縮小して透明性が改善した固体が得られる。

試料の SEM 観察により、気泡サイズは 400 ~ 600nm が最多で、エリプソメーター(SE-2000, SEMILAB)による計測では 1%程度の低屈折率化が認められた。これはローレンツ-ローレンツの式を用いて気泡の体積分率を見積もると 1.8vol.% に相当するため、エマルジョンの水泡は気泡化の際に体積比 36%まで縮小していることが確認できた。PDMS はフレキシブルな材料であるため、圧縮や伸長をかけることで、気泡変形に異方性を与えることが期待できる。実験的に圧縮時の光学透明性を計測した結果、圧縮比を 1 ~ 0.5 まで変化させてレーザー光 (532nm) の透過率は圧縮に伴い泡が光の透過方向に圧縮され、散乱係数は 1.14cm^{-1} から 0.66cm^{-1} まで低下することが確認できた。散乱係数の異方性についても調査を行なっている。

本研究は JSPS 科研費の JP22K04969 助成を受けたものである。



References

- [1] H.Nomada, et al.: "Carbon-polydimethylsiloxane-based integratable optical technology for spectroscopic analysis", Talanta, vol. 166, pp. 428-432. (2017). [2] G. P. Agrawal, Nonlinear Fiber Optics, 3rd. ed., (Academic Press, Boston, 2001)
- [2] Yeunjun Kwak, Yunsung Kang, Wonkeun Park, Eunhwan Joa and Jongbaeg Kim, "Fabrication of fine-pored polydimethylsiloxane using an isopropyl alcohol and water mixture for adjustable mechanical, optical, and thermal properties" RSC Adv., 2021,11, 18061-18067

紫外波長変換材料 LaBGeO₅ の 2 次非線形光学定数精密測定 (II)Accurate measurements of second-order nonlinear-optical coefficients of UV wavelength-conversion material LaBGeO₅ (II)

中央大理工, °(M1C) 佐藤 柗二, 山野辺 真輝, 石川 新太郎, 庄司 一郎

Chuo Univ., °Syuji Sato, Masaki Yamanobe, Shintaro Ishikawa, Ichiro Shoji

E-mail: a19.c6s6@g.chuo-u.ac.jp

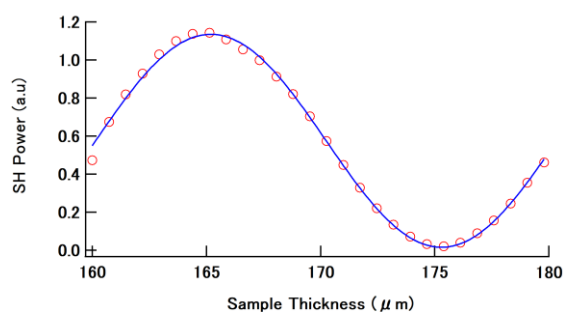
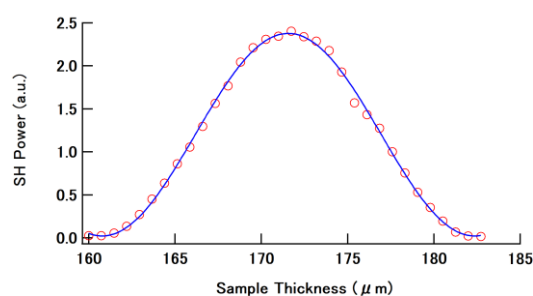
LaBGeO₅ (LBGO)は波長 195 nm まで透明であることや潮解性がないことから紫外光発生用波長変換材料として期待されている。しかしながら、波長変換の効率を決定する 2 次非線形光学定数 (d 定数)の値は報告値が少なくばらつきが大きかった。我々はこれまで基本波波長 1064 nm¹⁾と 532 nm²⁾において d 定数を測定したが、先に測定した 1064 nm での値に誤りがあることがわかった。そこで今回、波長 1064 nm で再測定を行ったので報告する。

測定にはオキサイド社製 LBGO 結晶を加工・研磨した X, Y カットのウェッジ試料(ウェッジ角約 0.28°)を用いた。コングルエント LiNbO₃ の d_{33} (= 25.2 pm/V)を参照物質とした相対測定を行った。基本波光源には Q-スイッチ Nd:YAG レーザ(繰り返し周期 1 kHz, パルス幅 1.5 ns, パルスエネルギー 50 μ J)を用い、ビーム径約 330 μ m で試料に入射した。LiNbO₃ からの第 2 高調波パワーは LBGO に比べ 30 倍程度大きいため、複数枚の ND フィルタを透過させ、光電子増倍管で検出する信号強度を同程度とした。 d_{31} , d_{32} からの第 2 高調波パワーはその他の成分に比べ 1 桁程度小さいため、光電子増倍管の電圧を 600 V から 830 V にして測定精度の向上を図った。

測定結果の例として、Fig. 1 と Fig. 2 にそれぞれ d_{33} と d_{22} の Maker フリンジを示す。赤丸は実験値、青線は理論曲線によるフィッティングである。解析により得られた d 定数および Miller's Δ を Table 1 に示す。 d 定数の大小関係は波長 532 nm と一致した。

Table 1. Obtained d coefficients (pm/V) and Miller's Δ 's (10^{-2} pm/V) of LBGO

Wavelength	d_{33}	d_{22}	d_{11}	d_{31} (= d_{32})	Δ_{33}	Δ_{22}	Δ_{11}	Δ_{31} (= Δ_{32})
1064 nm [1]	0.70	0.63	0.35	0.18	4.9	5.3	3.0	1.4
532 nm [2]	1.15	1.41	0.55	0.75	6.3	9.3	3.6	4.6
1064 nm (This work)	0.79	1.17	0.45	0.62	5.6	9.9	3.7	4.9

Fig. 1. Maker fringes for d_{33} Fig. 2. Maker fringes for d_{22} 1) I. Shoji *et al.*, Adv. Photon. Congress 2018, paper NoM3J.5. 2) M. Yamanobe *et al.*, Adv. Photon. Congress 2022, paper JTU2A.24-1.

レーザー損傷誘起振動による損傷発生位置の特定

Survey of laser induced damage onset by occurred vibration

近大生物理工¹, 量研関西研² ○(B4) 秋吉諒一¹, 三上勝大¹, 宮坂泰弘²

Kindai Univ.¹, QST KPSI² ○(B4) Ryouichi Akiyoshi¹, Katsuhiro Mikami¹, Yasuhiro Miyasaka²

E-mail : 1818360035n@waka.kindai.ac.jp

1. はじめに

レーザー損傷は、高出力レーザー装置の動作に支障を来す。前回の報告では、レーザードップラー振動計を用いた振動検知により、顕微鏡観察と同等精度で光学素子のレーザー損傷の検出を実証した^[1]。本研究では、レーザー損傷誘起の振動情報を解析することで、レーザー損傷の発生位置の特定ができたので報告する。

2. 実験方法

Fig.1 にサンプルのレーザー照射位置を示す。本研究では、損傷発生用に Nd:YAG レーザー (波長 1064 nm, パルス幅 7 ns) を使用した。サンプルとしてサイズ 76 mm×26 mm の厚さ 1 mm のクラウンガラスを用いて、損傷閾値 (約 6 J/cm²) の約 2 倍のフルエンスで照射し、レーザー損傷を発生させ、レーザードップラー振動計を用いて計測した。サンプルの短辺一か所を固定し、Fig.1 赤点線丸の位置で振動検出を行った。Nd:YAG レーザーの照射位置は、振動検出点から水平方向と垂直方向に一定間隔ごとに移動させ (Fig.1 の黒丸) 計測を行った。計測した振動時系列データをフーリエ変換により解析した。

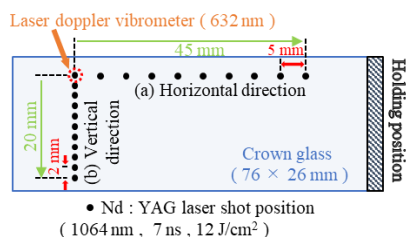


Fig.1 Laser irradiation map on experimental sample

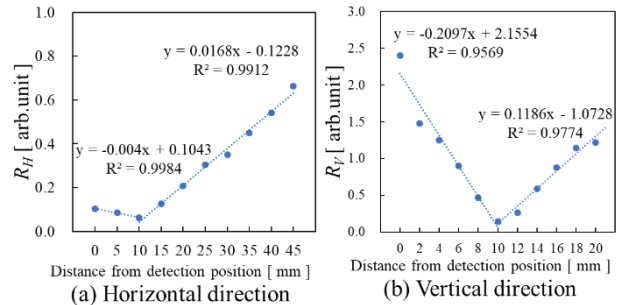


Fig. 2 Experimental result

3. 実験結果

Fig.2 に実験結果を示す。横軸は振動検出位置からの距離、Fig.2 (a)の縦軸である R_H は式①、Fig.2 (b)の縦軸である R_V は式②の計算方法で得られた値を表している。

$$R_H = \frac{P_{(2000-3000)} + P_{(4000-6000)}}{P_{(100-500)} + P_{(500-1000)}} \quad \dots \textcircled{1}$$

$$R_V = \frac{P_{(500-1000)}}{P_{(100-500)}} \quad \dots \textcircled{2}$$

式①と式②の $P_{(f_1-f_2)}$ は、FFT 解析結果の周波数 f_1 から周波数 f_2 の帯域で得られた最も高いピークの強度である。 R_H はレーザー損傷発生位置が振動検出点より 10 mm 離れた位置から固定側に近づくほど、 R_V は振動発生位置が両端に近づくほど線形に増加する。

レーザー損傷発生時の振動情報によりサンプルの固有振動を活用することで、レーザー損傷位置の特定を達成した。詳細は講演に譲る。

[参考文献]

- [1] 秋吉諒一, 他; 第 70 回応用物理学会春季学術講演会, 15a-PB01-6

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.4] Code-sharing Session of 3.10 & 3.11

[23p-A309-1 ~ 10] CS.4 Code-sharing Session of 3.10 & 3.11

Tomohiro Amemiya(Tokyo Tech), Yuto Moritake(Tokyo Inst. Tech.)

Sat. Sep 23, 2023 1:15 PM - 4:00 PM A309 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

- [23p-A309-1] **Radiation cooling packaging materials using metamaterial technology**
 ○Tomohiro Amemiya¹, Sho Okada¹, Nobuhiko Nishiyama¹, Kensuke Otsuka², Tatsuhiro Urakami² (1.Tokyo Tech, 2.MITSUI CHEMICALS)
 1:15 PM - 1:30 PM
- △[23p-A309-2] **Construction of sub-cooling of vapor compression refrigeration cycle by using radiative sky cooling materials**
 ○Ryosuke Osugi^{1,2}, Tsutomu Wakabayashi¹, Tomoya Kosaka², Masayuki Sugimoto¹, Masahiro Suemitsu^{1,2} (1.Osaka Gas, 2.SPACECOOL)
 1:30 PM - 1:45 PM
- [23p-A309-3] **Metamaterial Cooling inside Sealed Container**
 ○Naoya Kawamura¹, Wakana Kubo¹ (1.Tokyo Univ. of Agri. and Tech.)
 1:45 PM - 2:00 PM
- ▲[23p-A309-4] **Design of Optical Cavities to Enhance Photon Transport Efficiency in Thermophotovoltaic Systems**
 ○Haolin Wang¹, Makoto Shimizu¹, Hiroo Yugami¹ (1.Tohoku Univ.)
 2:00 PM - 2:15 PM
- △[23p-A309-5] **Investigation of a diamond chiral photonic waveguide**
 ○Kosuke Takada¹, Ryota Katsumi¹, Takashi Yatsui¹ (1.TUT)
 2:15 PM - 2:30 PM
- [23p-A309-6] **Design of Hybrid Si-Bi:YIG Metasurfaces Exhibiting Giant Faraday Rotation**
 ○Siyuan Gao^{1,2}, Yasutomo Ota³, Tianji Liu⁴, Feng Tian¹, Iwamoto Satoshi^{1,2} (1.RCAST, Univ. Tokyo, 2.IIS, Univ. Tokyo, 3.Keio Univ., 4.CIOMP, CAS)
 2:45 PM - 3:00 PM
- △[23p-A309-7] **Control of reflectance by utilizing quadrupole resonances and photothermal effect in ellipsoidal silicon metasurface**
 ○Seiya Shinkai¹, Junichi Takahara^{1,2} (1.Grad. School of Eng., Osaka Univ, 2.Photonics Ctr., Osaka Univ)
 3:00 PM - 3:15 PM
- [23p-A309-8] **Investigation of slow light waveguides based on bound states in the continuum on a magneto-optical thin film.**
 ○(M1)Yuta Tanimura¹, Yuta Narazaki¹, Tatsuya Kitai¹, Siyuan Gao², Satoshi Iwamoto², Yasutomo Ota¹ (1.Keio Univ., 2.Rcast the Univ. of Tokyo)
 3:15 PM - 3:30 PM

[23p-A309-9] Photothermal Effect of Spherical Silicon Nanoparticles with Mie resonance

○Kana Kondo¹, Hiroshi Sugimoto¹, Minoru Fujii¹ (1.Kobe Univ.)

3:30 PM - 3:45 PM

[23p-A309-10] Proposal and Analysis of Surface-Normal Polarization-Independent Plasmonic Modulator

○Seidai Karakida¹, Hiroki Miyano¹, Koto Ariu¹, Yoshiaki Nakano¹, Takuo Tanemura¹

(1.The Univ. of Tokyo)

3:45 PM - 4:00 PM

メタマテリアル技術を用いた放射冷却パッケージ材

Radiation cooling packaging materials using metamaterial technology

雨宮 智宏^{1*}, 岡田 祥¹, 西山 伸彦¹, 大塚 健祐², 浦上 達宣²

¹T. Amemiya^{1*}, S. Okada¹, N. Nishiyama¹, K. Otsuka², T. Urakami²

東京工業大学 工学院電気電子系¹

三井化学株式会社 ICT ソリューション研究センター²

¹Dept. of Electrical and Electronic Engineering, Tokyo Institute of Technology, ²MITSUI CHEMICALS, INC.

*E-mail: amemiya.t.ab@m.titech.ac.jp

1. はじめに

放射冷却メタマテリアルは、電磁波放射を大気による吸収の影響が小さい波長帯(大気の窓: $8\ \mu\text{m}$ - $13\ \mu\text{m}$)に集約することで、対象物がもつ熱を効率よく放出させ表面温度を下げる効果を与える。現在までに、屋外耐候性をもつ放射冷却シートや放射冷却ソーラパネルなどが実現されている[1, 2]。そのような中、当研究グループでは、透明樹脂ワニスに上記技術を適用することで、放射冷却パッケージ材を開発したので、その報告を行う。

2. 放射冷却パッケージ材の解析・特性評価

放射冷却現象を促進するためには、対象物の放射面での分光特性を制御することが重要となる。このとき放射面を覆うパッケージ材の条件としては、「大気の窓でのみ放射率が極めて高く、その他の波長領域で反射率が高い」という性質を有することが理想的である。

以上の点から、本研究で提案するパッケージ材の構成を Fig. 1 に示す。まず、マトリクスには、可視域で透明であり、大気の窓付近の赤外帯域で大きな吸収を示す高分子材料を用いた。またゲスト材料として、同じく可視域で透明であり、大気の窓付近で強い共振が起きるように形状を制御した TiO_2 ナノ粒子を導入した。

Fig. 2 に、電磁界解析により求めたパッケージ材の透過特性の波長依存性を示す。粒子径 ϕ が $2.5\ \mu\text{m}$ のとき、 $35\ \text{THz}$ 近傍で強い共振が生じ、吸収率(すなわち放射率)が増大した。 ϕ が増加するにつれて、共振波長が低周波側へシフトしていき、 ϕ が $3.1\ \mu\text{m}$ より大きくなると TiO_2 の材料特性から共振時の吸収率に大きな変化は見られなくなった。以上の結果より、大気の窓付近で強い共振が起きよう、 TiO_2 ナノ粒子のサイズは $2.5 < \phi < 3.1$ の範囲が適当であることが分かった。

分散粒径が上記範囲に重なっている大粒径 TiO_2 (一次粒子径 $1\ \mu\text{m}$) を用いて高分子材料との複合材料を作り、それを対象物(KBr 基板)に塗布することで、対象物表面の温度変化を測定した。実験ではソーラシミュレータにより、一定間隔(3 min)で照射と非照射を繰り返し、表面温度の時間変化を赤外線サーモグラフィにより観測した。Fig. 3 に結果を示す。これにより、照射時・非照射時ともに、パッケージ材の放射冷却効果が得られていることが明らかとなった。

謝辞：本研究は、JSPS 科研費(22H01520)、JST CREST

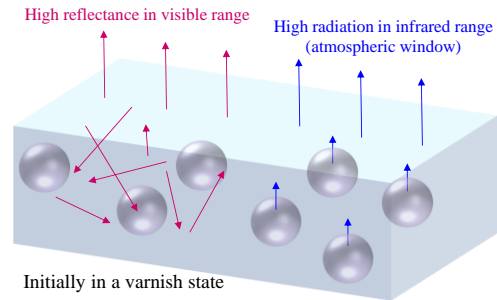


Fig. 1. Schematic image of the packaging materials that promote radiation cooling.

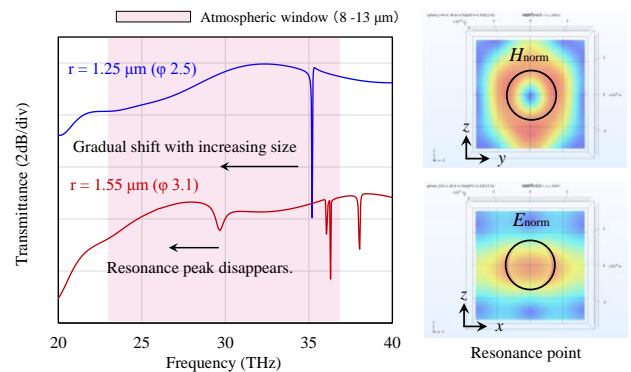


Fig. 2. Calculated wavelength dependence of transmission characteristics of packaging materials.

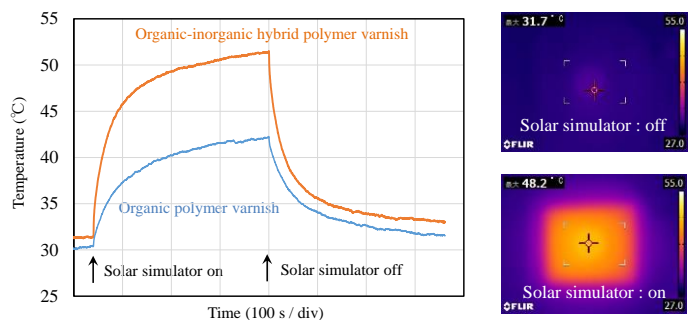


Fig. 3. Measured time variation of surface temperature of KBr substrate coated with packaging materials.

(JPMJCR18T4), JST ASTEP (JPMJTR22RG)の援助により行われた。

参考文献

- [1] Y. Zhai et al. "Scalable-manufactured randomized glass-polymer hybrid metamaterial for daytime radiative cooling." *Science* **355**, 1062-1066 (2017).
- [2] T. Li et al. "A radiative cooling structural material." *Science* **364**, 760-763 (2019).

放射冷却素材を用いて過冷却度を増大させた蒸気圧縮冷凍サイクルの構築 Construction of sub-cooling of vapor compression refrigeration cycle by using radiative sky cooling materials

○大杉亮輔^{1,2†}, 若林努¹, 甲坂朋也², 杉本雅行¹, 末光真大^{1,2‡}
大阪ガス¹, SPACECOOL²

Osaka Gas, SPACECOOL, ○R. Osugi^{1,2†}, T. Wakabayashi¹, T. Kosaka², M. Sugimoto¹, M. Suemitsu^{1,2‡}
E-mail: †r-oosugi@osakagas.co.jp, ‡m-suemitsu@osakagas.co.jp

【序】放射冷却現象によって直射日光下においても夜間同様、周囲より受動的に温度低下する素材(放射冷却素材)は、脱炭素社会実現の一助として期待されており、近年研究が盛んに行われている^[1-4]。我々はこれまで放射冷却素材を実現^[2]するとともに、放射冷却パネルを用いた蒸気圧縮冷凍サイクルの冷媒過冷却度の向上による冷却効率 (COP_c) の改善について理論検討を行ってきた^[4]。蒸気圧縮冷凍サイクルの圧力-比エンタルピー線図を Fig.1 に示す。本サイクルでは冷媒を蒸発器で蒸発(4→1)させた際の蒸発潜熱を冷却に利用しており、Fig.1 赤点線のように凝縮後の冷媒温度を飽和液温度(3)より更に低温(3')に冷却する(過冷却度を増大させる)ことで COP_c を向上させられる。前回の検討では、全波長における大気および素材の熱輻射を考慮した熱収支計算を行い、パネル温度(T_{SC})について実測との整合をとり、併せて COP_c の計算を行った。今回は実際に放射冷却パネルを構築しその中に熱媒体として水を流し、熱媒体を放射冷却により冷却する実証試験を実施したので報告する。

【設計・作製】パネルの外観を Fig.2A)に示す。流体の流れる管路が蛇腹状に並列された塩化ビニル製樹脂シート(INTEX 製 Krystal Clear Pool Basics™)を用意し、日射反射率95%、赤外放射率95%の粘着剤付の放射冷却素材(SPACECOOL 製フィルム SCF-A25M-ONS)を貼り合わせた。管路の幅は20mm、管路壁面間の距離は5mmであり、水が熱交換する有効面積が88%であるパネルを用いた。裏面に地面や空気からの入熱を抑制する目的で厚さ40mmの断熱材(スタイロフォーム)を設置し実験を行った。温水器によって温められた水を電動ポンプにて一定流量で流す系を構築した。パネル通過前後の水の温度およびパネル中央の水温を、K熱電対を用いて測定した。

【実証試験】試験時の外部条件は、外気温 28.2°C、日射強度 0.8 kW/m²、パネル上の空気の風速が 1 m/s であった。1.44m² のパネルに対し、2.0L/min の流量で水を流したところ、44.0°Cの水が42.6°Cまで冷却されパネル中央裏面の温度は41.5°Cとなった。パネルの表面温度の分布を Fig.2B)に示す。試験と同条件で計算を実施すると、温水から放出される熱エネルギーが0.31 kW/m²となり、出口温度が42.5°Cと1.5°C低下することがわかり、おおむね実験と一致することが分かった。パネル面積と水温の関係に関して、実験と理論の比較とあわせ、放射冷却性能と温度の関係など詳細は当日報告する。

【文献】[1] A.P. Raman, *et al.*, *Nature* **515**, 540 (2014). [2] 末光 *et al.*, 秋応物, 21a-E208-11 (2019). [3] E A. Goldstein, *et al.*, 17th IRACC, 2293 (2018). [4] 大杉 *et al.*, 春応物, 16a-E502-3(2023).

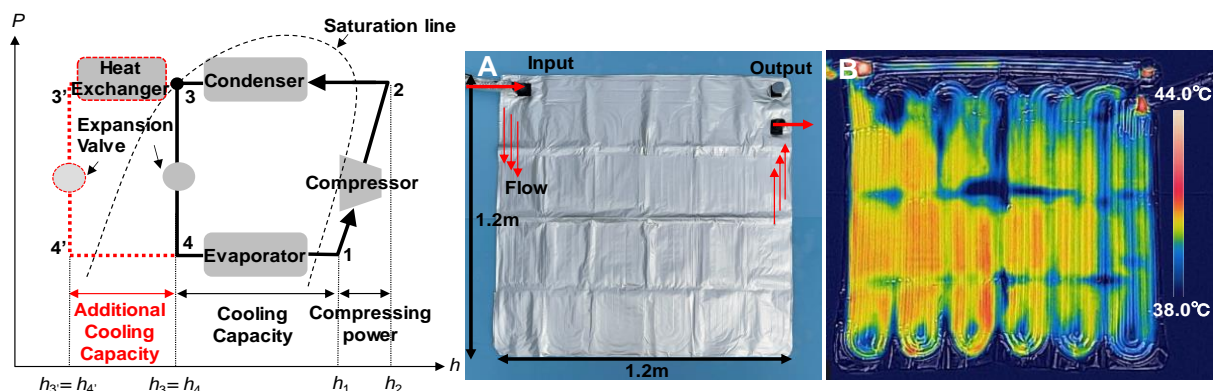


Fig. 1 Pressure-enthalpy chart of a vapor compression refrigeration cycle.

Fig. 2 A) A passive radiative cooling panel, B) thermographic image of the panel.

熱輻射吸収メタマテリアルによる密閉空間内の冷却

Metamaterial Cooling inside Sealed Container

東京農工大, [○](M)川村直矢, 久保若奈Tokyo Univ. of Agri. Technol. (TUAT), [○]Naoya Kawamura, Wakana Kubo,

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

放射冷却は熱放射を通じて高温の物体の温度を低下させる現象である。例えば、屋根や車の温度上昇を抑制できる技術であることから、社会に普及すれば電力消費量の抑制につながると言える。一方、熱を放出する高温の物体と熱を受け取る低温の物体の間に吸収体が存在すると、熱エネルギーの移動が妨げられるため放射冷却は生じない。従って、放射冷却では密閉された空間の温度を低下させることはできない。それに対し我々は、メタマテリアル熱電変換の技術を利用することで、密閉された空間を冷却する技術の着想に至った。

熱輻射吸収メタマテリアル (Metamaterial Absorber: MA)を熱電変換素子の片側の電極上に装着すると、MA は周囲が放出する熱輻射を吸収し、MA 構造内で局所的な熱に変換する。その局所的な熱は銅電極を介して熱電変換素子に伝導伝搬し、電気エネルギーとして回路に接続された抵抗で消費される [1, 2]。従って、密閉された空間内にメタマテリアル熱電変換素子を設置すれば、メタマテリアルは空間内の熱エネルギーを回収し、その熱は熱電変換によって電圧に変換する。回路が密閉空間外に延びていれば、熱エネルギーは回路を伝搬し、空間外へ排出されると推測した。本研究ではこの冷却機構が実現可能であるか実験的に検証した。

n型熱電変換素子の片面に MA 構造を形成した銅電極 (MA 電極)を、もう片面には MA を形成していない比較電極を装着し、MA 素子とした (Fig. 1(a)). 比較のため、熱電変換素子の両端に比較電極を装着した比較素子も準備した。素子を断熱容器内に設置し、容器内の温度及び出力電圧を測定した。容器内の初期温度を 47.0 °Cとし MA 素子と比較素子の温度低下の様子を確認した結果を Fig. 1(b)に示す。

32.5 °Cに到達するまでの平均時間を算出したところ、MA 素子は 4047 秒、比較素子では 4940 秒であった。また、容器内温度が 32.5 °Cに到達するまでの平均熱電出力電圧を調べたところ、MA 素子出力電圧は 12.5 μV 、比較素子は-2.91 μV であることを確認した (Fig. 1(c)). MA 素子で 4 回、比較素子で 3 回繰り返し測定したが MA 素子を設置した容器内の温度低下は顕著であった。これらの結果から、MA の熱輻射吸収と熱電変換により、容器内の熱エネルギーが電圧に変換され、外部に延びる回路を伝って熱エネルギーが容器外に放出されたため、メタマテリアル熱電変換によって密閉容器内の冷却が実現したと結論した。

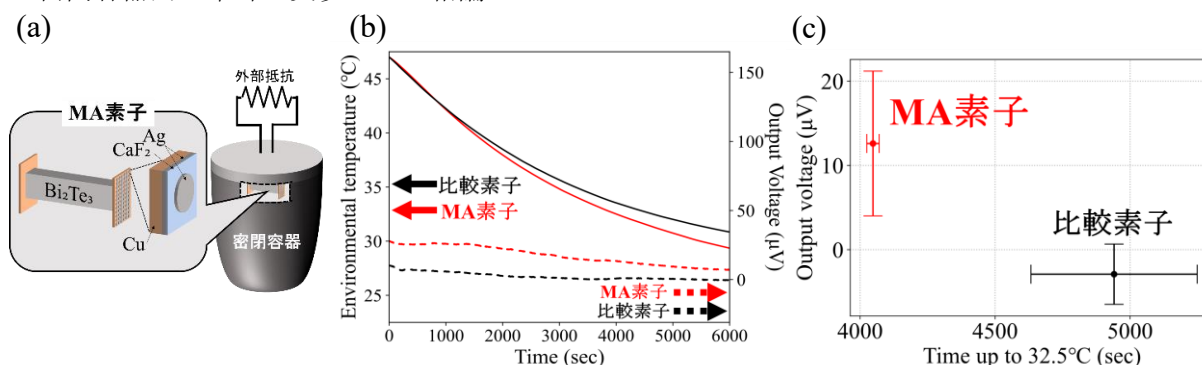


Fig. 1 (a) Schematic of experimental system. (b) Time dependence of temperatures inside the container with thermoelectric devices loaded w/o MA and their output voltages. (c) Comparison of the time up to 32.5°C and output voltage generated on the devices w/o MA.

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

[2] T. Asakura, T. Tanaka*, W. Kubo*, *arXiv: Physics*, 2204. 13235 (2022).

謝辞 Bi_{0.3}Te₃+Ru 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。

Design of Optical Cavities to Enhance Photon Transport Efficiency in Thermophotovoltaic Systems

Tohoku Univ.¹, °Haolin Wang¹, Makoto Shimizu¹, Hiroo Yugami¹

E-mail: wang.haolin.p2@dc.tohoku.ac.jp

【Introduction】 A thermophotovoltaic (TPV) system is a kind of power-generating system that converts thermal energy into electrical energy via photons. The efficient conversion of heat to photons enables the possibility of achieving an efficiency of over 50%. A typical TPV system comprises a heat source, an emitter, and TPV cells. In practical applications, multiple TPV cells are often arrayed together due to the limitations of a single cell's output voltage and power. However, it's difficult to position the PV cell array too close to the emitter because of configuration constraints and the high temperature of PV cells. In addition, at current, TPV cells are expensive. To reduce costs, it is better to find ways to reduce the cell area. Also, the photon recycling can be achieved by high-reflectance cells proposed recently ^[1] and well confined cavity. Therefore, the design of an optical cavity that enables efficient photon transport from the emitter to the cells, ensuring effective photon recycling in the TPV system, is of crucial importance.

【Method】 The analysis commenced by constructing a model comprising an emitter, an optical cavity, and PV cells. Ray-trace simulations were conducted (TracePro, Lambda Research Corporation). The model incorporated several assumptions: a blackbody emitter, ideal PV cells with a reflectance of zero for in-band and different values for out-of-band to evaluate the different levels of photon recycling, and a constant reflectance for the optical cavity wall. The evaluation focused on four factors: optical efficiency (the ratio of energy absorbed by the PV cells to the energy emitted from the emitter), loss rate (the ratio of energy neither absorbed by the PV cells nor reflected back to the emitter to the energy emitted from the emitter), area ratio (the ratio of the cell area to the emitter area), and system efficiency (the ratio of the maximum output power generated by the PV cells, based on the detailed balance model ^[2], to the net input power).

【Results & Discussion】 In the ideal case with a cavity wall reflectance of 1, three different optical cavity shapes were tested (Fig.(a)). It was found that the optical efficiencies of these shapes were nearly identical, suggesting minimal influence of shape. For area ratios below one, the optical efficiency was proportional to the area ratio, while for ratios above one, the efficiency remained close to one. To explore a more realistic case with non-unit cavity reflectance, various parameters were adjusted. Increasing the cavity reflectance resulted in higher optical efficiency and reduced loss rate. Consequently, a cavity wall reflectance of 0.95 was selected since it should be high and attainable. The optical efficiency and loss rate of the hexagon and cylinder emitter are almost the same, and the cylinder emitter is preferred because it is easier to manufacture (Fig.(b)). The length of the PV cell array was set to a sufficiently long value (normalized length of 20) to ensure that it no longer impacted the optical efficiency and loss rate. Among the tested cavity shapes, the hexagon cavity exhibited the highest optical efficiency and the lowest loss rate, making it the preferred choice.

The system efficiency was assessed for various area ratios and cell out-of-band reflectance (R_{cell}). In the ideal case ($R_{\text{cavity wall}}=1$), the system efficiency remained constant regardless of area ratio, indicating that the cell area could be reduced without compromising system efficiency. However, in the practical scenario ($R_{\text{cavity wall}}=0.95$), a decrease in the area ratio corresponded to a decrease in efficiency. An optimal area ratio of 1 was identified, emphasizing that reducing cell area to save costs would inevitably result in a reduction in system efficiency.

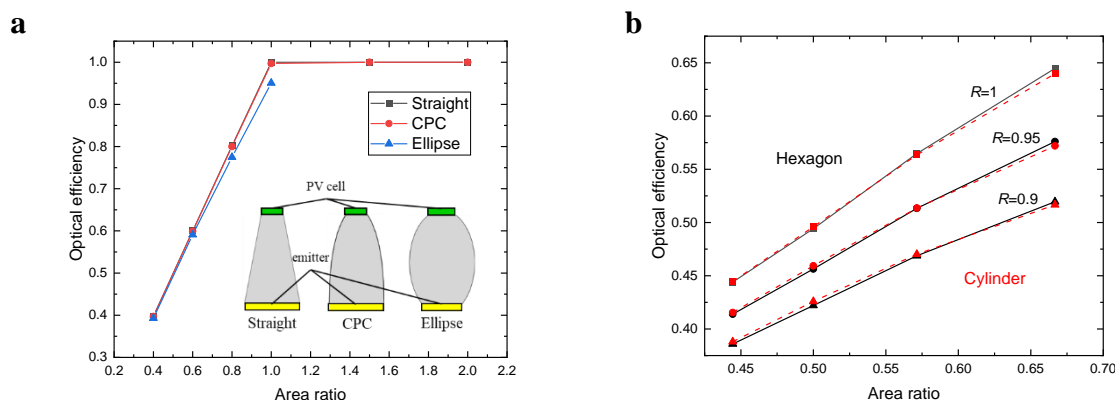


Figure The optical efficiency obtained from ray-trace simulation under varying area ratios for (a) three different optical cavity shapes and (b) different cavity wall reflectance, along with two types of emitter shape.

[1] D. Fan, T. Burger et al., Nature, vol. 586, no. 7828, pp. 237–241, 2020. [2] W. Shockley and H. J. Queisser, Journal of Applied Physics, vol. 32, no. 3, pp. 510–519, 1961.

ダイヤモンドカイラル光導波路構造の検討

Investigation of a diamond chiral photonic waveguide

¹豊橋技科大, [○]高田晃佑¹, 勝見亮太¹, 八井 崇¹

¹TUT, [○]K. Takada¹, R. Katsumi¹, and T. Yatsui¹

E-mail: takada.kosuke.wu@tut.jp

はじめに 単結晶ダイヤモンド中における単一の窒素-空孔 (NV) センタは、量子情報処理や量子センシングといった幅広い量子分野で研究開発が進められている。とりわけ微小領域における高感度な磁場測定に用いられ¹、生化学²や物性物理³などの分野で応用が展開されている。その測定原理は、磁場に応じて変動する NV センタのスピンの状態を発光量の大小 (コントラスト) として読み出すものであるが、同物理量は NV センタの特性により決まるため制御が困難であり、計測感度を大きく律速している。そこで我々は、NV センタの状態遷移における円偏光選択則⁴に着目し、放出されるフォトンの円偏光状態に応じて光伝搬方向を制御可能なカイラル導波路⁵を基調とした、コントラストの飛躍的向上が可能なデバイス構造を提案・設計したので報告する。

実験 図 1a のように x 方向に対して非対称な位置に NV センタを配置したカイラル導波路構造を検討した。同構造において、 $\pm z$ 方向への伝搬光強度を I_{\pm} としたとき、NV センタのスピンの状態 $| \pm 1 \rangle$ に対応した円偏光発光が片側方向へ選択的に結合する ($I_{+} \neq I_{-}$)。一方、スピンの状態 $| 0 \rangle$ に対応した直線偏光発光の場合、両側へ等方的に結合する ($I_{+} = I_{-}$)。よって光出力を $I_{out} = |I_{+} - I_{-}|$ とすれば、直線偏光発光のみ $I_{out} = 0$ となるため、スピンの状態間での発光コントラストを 1 にすることが可能になる。計測感度の最適化にあたっては、コントラストに合わせてフォトンの利用効率も重要となるため、円偏光発光に対する I_{out} を最大化する必要がある。円偏光発光が最も選択的に結合しつつ導波路が基本モードのみを有するという前提の下、断面における幅 w_{rect} と高さ h_{rect} を変化させながら電磁界解析を実行した。NV センタからの発光量を 1 とした際に図 1b のような I_{out} の分布が得られ、 $w_{rect} = 200$ nm、 $h_{rect} = 120$ nm のときに I_{out} が最大値 19% となった。また同寸法のデバイス内における片側への光伝搬も図 1c のように確認した。その他詳細は当日報告する。

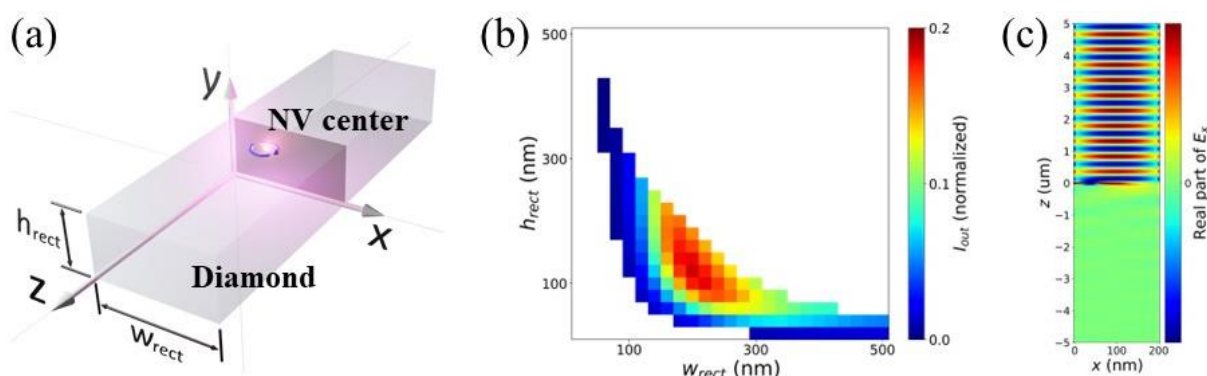


Fig. 1. (a) Geometry of a diamond chiral waveguide. (b) I_{out} vs. w_{rect} and h_{rect} derived from FDTD calculations. (c) Light propagation on the $y = h_{rect}/2$ plane of the optimized chiral waveguide.

参考文献 ¹J. M. Taylor, *et al.*, Nat. Phys. **4**, 810-816 (2008). ²L. T. Hall, *et al.*, PNAS **107**, 44, 18777-18782 (2010). ³E. Lee-Wong, *et al.*, Nano Lett. **20**, 5, 3284-3290 (2020). ⁴J. R. Maze, *et al.*, New J. Phys. **13**, 025025 (2011). ⁵I. Söllner, *et al.*, Nat. Nanotech. **10**, 775-778 (2015).

謝辞 科研費(21K20428、22H01525、22K14289)、東電記念財団、村田学術振興財団、松尾学術振興財団

巨大なファラデー回転を示すハイブリッド Si-Bi:YIG メタサーフェスの設計

Design of Hybrid Si-Bi:YIG Metasurfaces Exhibiting Giant Faraday Rotation

東大先端研¹, 東大生研², 慶應大学³, 中科院長春光機所⁴, °高思源^{1,2}, 太田泰友³, 刘天際⁴,
田豊¹, 岩本敏^{1,2}; RCAST¹, IIS², Univ. Tokyo, Keio Univ.³, CIOMP, CAS⁴, °S. Gao^{1,2}, Y.
Ota³, T. Liu⁴, F. Tian¹, and S. Iwamoto^{1,2}

Email: gaosy@iis.u-tokyo.ac.jp, ota@appi.keio.ac.jp

The utilization of magneto-optical (MO) effects offers a promising approach for creating nonreciprocal optical instruments, such as Faraday isolators and circulators. Despite this, the MO effect in most bulk materials is low especially within the optical range, posing significant challenges to the miniaturization of MO devices. Recently, all-dielectric MO metasurfaces (MS) that increase Faraday rotation angle (θ_F) while maintaining high light transmission (T) in an electromagnetically induced transparency (EIT) scenario were numerically demonstrated [1][2]. However, precise nanopatterning on garnet material is rather challenging, in which the fabrication defects severely impact its optical performance [3]. A hybrid MO MS without nanopattern in MO layer was demonstrated [4], while the θ_F is insufficient for optical isolators (which necessitate $\theta_F \sim 45^\circ$). In this study, we present a design of hybrid MS composed of Si and bismuth substitute iron garnet (Bi:YIG) that immensely enhanced θ_F at telecom wavelengths with submicron Bi:YIG thin film.

The all-dielectric MS is composed of square arrays of air holes perforated in 140 nm-thick Si slab on bismuth substituted YIG (Bi:YIG) thin film embedded in SiO_2 (Fig.1(a)). By deviating b from a (Fig.1(b)), the high- Q guided mode resonance (GMR) was excited with vertical incidence and largely enhanced θ_F . The high T was realized by spectrally and spatially overlapping the GMR with the low- Q dipole modes via tuning h_{YIG} . As a result, $\theta_F = 45^\circ$ and $T = 65\%$ were numerically demonstrated with a 513-nm-thick Bi:YIG film, which is 800 times larger than that of plain Bi:YIG film with the same thickness. This photonic structure largely streamlined the fabrication process, which could be realized on the MO thin film on insulator (MOOI) substrate [5]. This design provided a viable route to numerous applications, such as ultrathin Faraday rotators, high-sensitivity magnetic field sensors and free-space modulators.

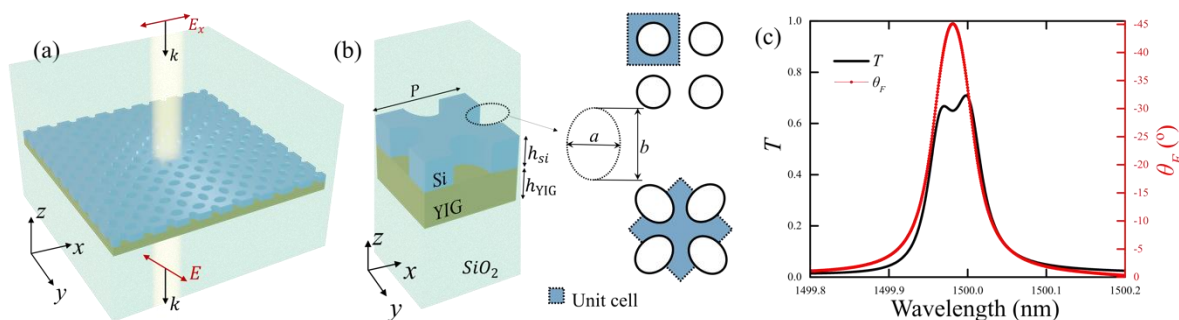


Figure 1. (a) Illustration of Si-Bi:YIG metasurface and (b) the unitcell of the simulation model; (c) Numerically simulated T and θ_F with EIT condition of a TE-like GMR overlapped with the ED-like modes ($P = 880$ nm, $a = 325$ nm, $b = 340$ nm, $h_{\text{Si}} = 140$ nm, $h_{\text{YIG}} = 513$ nm).

References: [1]. A. Christofi, et al., Opt. Lett. **43**, 1838 (2018); [2]. T. Kiel, et al., Opt. Lett. **46**, 1720 (2021); [3] S. Gao, et al., Opt. Express **31**, 13672 (2023); [4] S. Xia, et al., ACS Photonics **9**, 1240 (2022); [5] Siyuan Gao, et al., 18p-P03-2, JSAP 2021 Spring meeting.

Acknowledgements: This work was supported by KAKENHI (17H06138, 19K05300, 22H00298, 22H01994, 22K18989), JST CREST(JPMJCR19T1), JST FOREST Program (JPMJFR213F), Nippon Sheet Glass Foundation.

楕円型シリコンメタサーフェスにおける四重極子を用いた熱光学効果による

反射スペクトル制御

Control of reflectance by utilizing quadrupole resonances and photothermal effect in ellipsoidal silicon metasurface

阪大院工¹, 阪大フォトニクスセ² ◯(M1)新開 誠也¹, 高原 淳一^{1,2}Grad. School of Eng., Osaka Univ.¹, Photonics Ctr., Osaka Univ.²◯Seiya Shinkai¹, Junichi Takahara^{1,2}E-mail: shinkai@ap.eng.osaka-u.ac.jp

高屈折率誘電体を用いたミートロニクスでは、Mie共振を利用した物理現象や応用が研究されている[1]。我々は誘電体メタサーフェスの完全吸収体(Perfect Absorber: PA)による熱光学効果を用いた低消費電力で動作する光スイッチの研究を進めてきた[2]。電気四重極子(Electric Quadrupole: EQ)と磁気四重極子(Magnetic Quadrupole: MQ)による縮退臨界結合(Degenerate Critical Coupling: DCC)[3]を利用した PA は Q 値が高く、長波長側に双極子共振モードによる高反射率ピークができるため高効率の光スイッチングに適している[4]。

本研究では、EQ と MQ の DCC に基づく PA の作製を行い、温度上昇によるメタサーフェスの反射率スペクトルの変化を実証したので報告する。

Quartz 基板の上に Si 円柱ナノ構造を周期的に配列したメタサーフェス (Fig. 1) に波長 400~700nm の光を垂直入射した場合の吸収率スペクトルを Fig. 2(a) に示す。シミュレーション結果は楕円型メタ原子の実験結果とのフィッティングを行っている。Fig. 2(b) と(c)に波長 450nm の光が入射した時の電磁場分布を示す。

Fig. 3 に示すように、ヒーターにより温度上昇したメタサーフェスの反射率スペクトルが赤方偏移することを観測した。これは温度により Si の屈折率が変化したことが原因だと考えられる。今後、CW レーザー光 (波長 450nm) を照射して、熱光学効果を利用した双極子共振の反射率の変調を行う予定である。

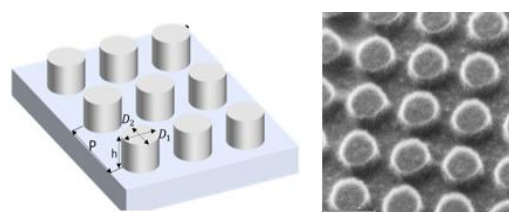


Fig. 1 Schematic and SIM image of ellipsoidal silicon metasurface ($h = 100\text{nm}$, $D_1 = 189\text{nm}$, $D_2 = 220\text{nm}$ and $P = 265\text{nm}$).

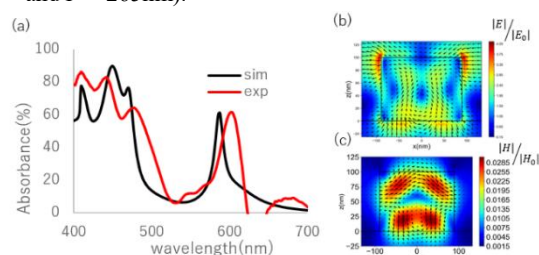


Fig. 2 (a) Absorption spectra of experiment and simulation. (b) Electric and (c) magnetic field distribution at 450nm.

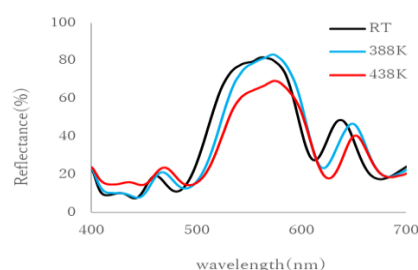


Fig. 3 Reflectance spectra at $T = 300\text{K}$, 388K and 438K .

参考文献

- [1] L. Tianji, *et al.*, *Nanophotonics*, **9**, 5, 1115 (2020).
- [2] K. Nishida *et al.*, *Nanophotonics*, **12**, 1, 139 (2023).
- [3] X. Ming, *et al.*, *Opt. Express*, **25**, 20, 24658 (2017).
- [4] R. Xu, *et al.*, *Opt. Lett.*, **46**, 15, 3596 (2021).

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

Investigation of slow light waveguides based on bound states in the continuum on a magneto-optical thin film

慶應理工¹, 東大先端研²

○(M1)谷村優太¹, 檜崎雄大¹, 北井達也¹, 高思源², 岩本敏², 太田泰友¹

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

○Y. Tanimura¹, Y. Narazaki¹, T. Kitai¹, S. Gao², S. Iwamoto², and Y. Ota¹

E-mail: y.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)やニオブ酸リチウム(LN)などの光学材料は、高性能光デバイスの作製に重要であることが知られている。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、LN 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)状態を活用することで低損失な TM モード光導波路が実現できることが報告された[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。本研究では、YIG 薄膜上に形成した BIC モード導波路と 1 次元フォトニック結晶を組み合わせた BIC スローライト導波路の検討を進めている。今回、スローライト状態[2]形成に必要なバンドギャップを示す BIC 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) の上に周期的な空孔を含んだ電子線レジストが装荷されている。空孔の格子定数を $a = 0.45 \mu\text{m}$ 、半径を r とし、レジスト幅 $w = 1.62 \mu\text{m}$ 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。 r/a 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)). $r/a =$

0.35において小さな伝搬損失8.43 dB/cmと大きなバンドギャップ $\Delta f = 0.877 \text{ THz}$ 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。

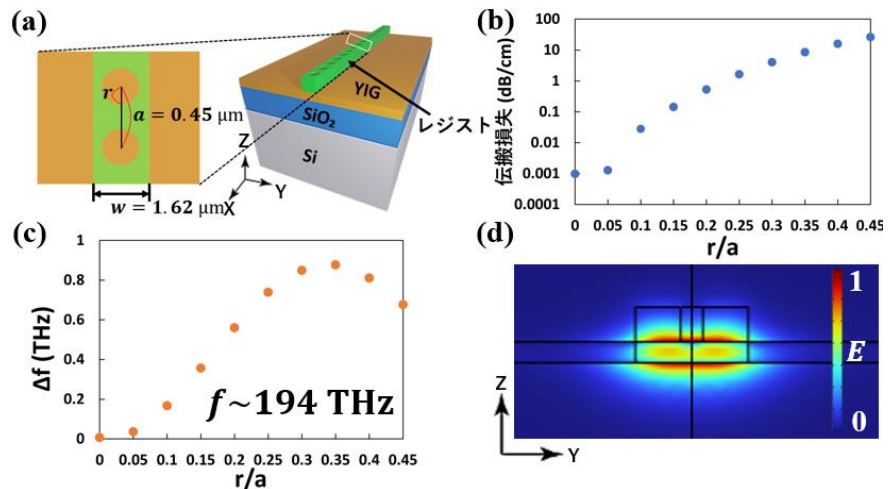


Figure.1 (a) Schematic of the investigated BIC slow light waveguide. (b) Computed propagation losses as a function of r/a . (c) Computed bandgaps as a function of r/a . (d) Field profile of the BIC mode designed with $r/a = 0.35$.

参考文献 [1] Z. Yu *et al.*, *Optica* **6**, 1342 (2019). [2] T. Baba, *Nat. Photonics* **2**, 465 (2008).

謝辞 本研究は JST 創発的研究支援事業 JPMJFR213F により遂行された。

Mie 共鳴を示す球状シリコンナノ粒子の光熱効果

Photothermal Effect of Spherical Silicon Nanoparticles with Mie resonance

神戸大院工¹, °(B4)近藤 香奈¹, 杉本 泰¹, 藤井 稔¹

Kobe Univ¹, °Kana Kondo¹, Hiroshi Sugimoto¹, Minoru Fujii¹

E-mail: sugimoto@cedept.kobe-u.ac.jp

ナノ粒子の光学的な共鳴を利用した高効率な光吸収と局所的な温度上昇は、エネルギー変換や光熱触媒、光温熱療法への応用が期待されている。これまでに、表面プラズモン共鳴 (LSPR) を示す金ナノ粒子やナノロッドを用いた光加熱を利用した研究が多数報告されているが、500K 以上の温度で形状が変化し、共鳴特性が大きく変化することが報告されている[1]。当グループでは、高効率な光加熱が可能な材料として、可視～近赤外領域で Mie 共鳴を示す 100-300nm の結晶シリコンナノ粒子に着目した[2]。シリコンは融点が高く(1414°C)、ラマン散乱ピークから温度を正確に測定することができる。また、高 Q 値の高次共鳴モードを持つため、金ナノ粒子よりも光加熱の効率が 4 倍程度高いことが計算で示されている[3]。本研究では、単一シリコンナノ粒子についてラマン散乱スペクトル測定を行い、上昇温度を決定する。粒径依存性を詳細に調べ、各共鳴モードによる光熱効果を定量的に明らかにする。

図 1 は、粒径の異なるシリコンナノ粒子の暗視野散乱スペクトルである。Mie 理論による計算結果と比較することで、粒径と共鳴モード(電気(ED)・磁気双極子(MD)、電気(EQ)・磁気四重極子(MQ))を決定した。各粒子について励起波長 633 nm でラマン散乱スペクトルを測定した(図 2)。633 nm に Mie 共鳴を持たない 188 nm の粒子(赤線)は黄線のバルクシリコン結晶とほぼ同じピーク波数をもつ。一方で、633 nm に MQ モードを有する 225 nm の粒子(青線)では、ラマンピークが 5.9 cm^{-1} 低周波数シフトしており、これは 272K の温度上昇に相当する。以上の結果は、シリコンナノ粒子の Mie 共鳴により、粒子内部に電場が局在し、高効率に温度が上昇していることを示唆している。講演では、広範囲なサイズの粒子で共鳴波長と温度上昇の関係に関する結果を報告する。また、異なる熱伝導性をもつ溶媒や基板における局所温度上昇の結果を既存の金ナノ粒子の結果と定量的に比較する。

[1] K. Setoura, *et al.*, *J. Phys. Chem. C*, 116, 15458–15466, (2012).

[2] H. Sugimoto, *et al.*, *Adv. Opt. Mater.*, 8, 2000033, (2020).

[3] P. George, *et al.*, *Nano Lett.* 17, 2945–2952, (2017)

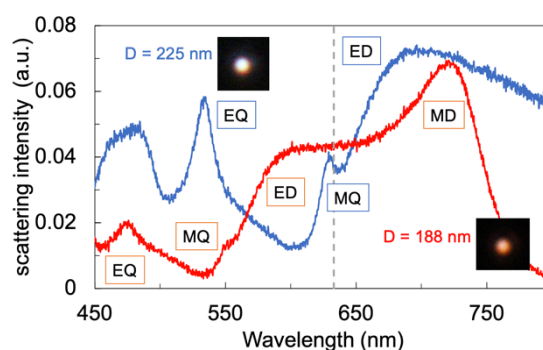


Figure 1. Measured scattering spectra of silicon nanoparticles with diameters of 188 nm (red) and 225 nm (blue). The excitation wavelength of Raman measurement is shown as a grey dashed line.

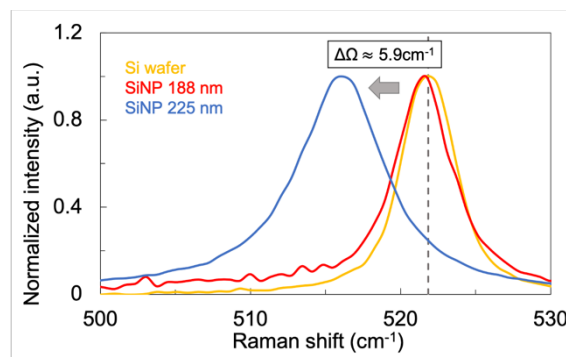


Figure 2 Raman spectra of a silicon wafer (yellow) and silicon nanoparticles with diameters of 188nm (red) and 225nm (blue).

垂直入射型偏波無依存プラズモニック光変調器の提案と解析

Proposal and Analysis of Surface-Normal Polarization-Independent Plasmonic Modulator

°(B)唐木田晴大¹, 宮野広基¹, (M1)蟻生高人¹, 中野義昭¹, 種村拓夫¹ (¹東大院・工)

Seidai Karakida¹, Hiroki Miyano¹, Koto Ariu¹, Yoshiaki Nakano¹, Takuo Tanemura¹

(¹The Univ. of Tokyo)

E-mail: karakida-seidai285@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

1. 背景

二次元アレイ化が可能な垂直入射型の高速度光変調器は、超並列光通信、光演算、イメージング等への応用が期待される[1]。これまで、一次元プラズモニック格子型共振器に電気光学ポリマー (electro-optic polymer: EO-polymer) を埋め込んだ構造が各種提案・実証されている[1-5]。しかしこれらは、偏波依存性を持つため用途が限定されていた。これに対して著者らは、二次元の二量化プラズモニック格子を用いた偏波無依存型光変調器を考案した[6]。今回、詳細な数値解析によりその有効性を実証したので報告する。

2. 提案構造

Fig. 1 に提案構造を示す[6]。EO ポリマーを上下の金 (Au) 膜で挟み込んだ metal-insulator-metal (MIM) 構造から成る。下部 Au 膜には、Fig. 2(a) のように楕円状の正方格子孔を形成する。孔の形状を円形から楕円形に変化させることで、意図的に対称性を乱した二量化格子となり、共振器の Q 値を精密に制御することが出来る[6,7]。共振波長において垂直入射光が MIM 構造内に閉じ込められ、Au 層によって吸収されるため、反射率スペクトルにディップが生じる。上下 Au 層に電圧を印加して EO ポリマーの屈折率を変化させることで、共振波長がシフトして反射率が変調される。先行研究[1-5]と異なり、 x - y 方向に対して対称なため、入射光の偏波に依存しない変調が得られる。

3. 数値解析結果

三次元有限差分時間領域法 (3D FDTD) により反射特性を計算した。周期 $P = 950$ nm、EO ポリマー厚 $h = 550$ nm、下部 Au 厚 $d_1 = 50$ nm、上部 Au 厚 $d_2 = 200$ nm、格子孔長径 $a = 665$ nm、格子孔短径 $b = 332.5$ nm、EO ポリマー屈折率 $n_{EO} = 1.65$ として、波長 1549 nm、 x 偏波の光を入射したときの電界分布を Fig. 2(b) に示す。共振モードが励起され、EO ポリマー内に強く光が閉じこもる様子が分かる。さらに、 ± 0.01 の範囲で n_{EO} を変化させたときの反射率スペクトルのシフトを Fig. 3 に示す。高い Q 値 (≈ 100) の共振が得られ、光電界と変調電界の重なりが大きいこと、効果的に変調が得られる。 y 偏波光に対しても同じ特性を示すため、偏波無依存垂直入射型の高速度光変調器として広範な分野への応用が期待される。

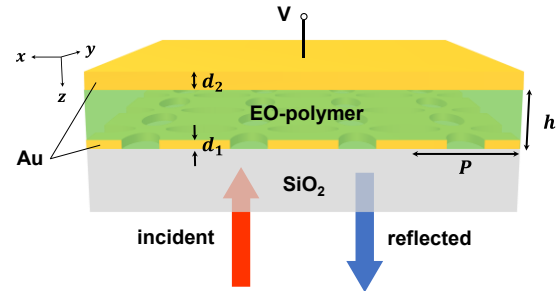


Fig. 1. Schematic of proposed modulator.

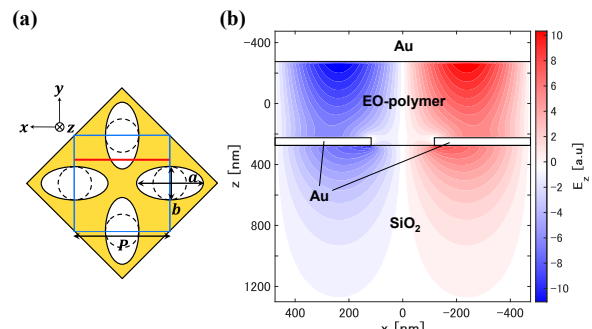


Fig. 2. (a) Unit cell (blue line). (b) Z-component of the electric field at the resonance wavelength (red line in (a)).

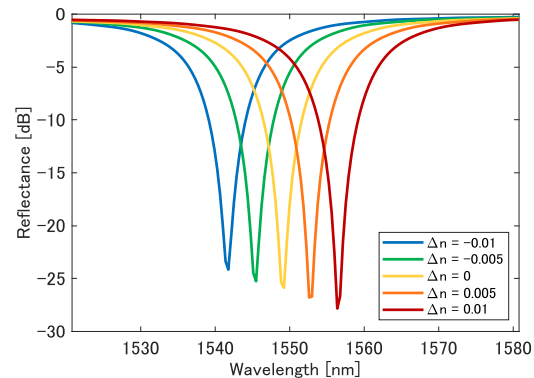


Fig. 3. Reflection spectrum shift when the refractive index of the EO polymer is modulated by Δn .

謝辞: 本研究は、国立研究開発法人情報通信研究機構の委託研究 (03601) の助成により実施された。

参考文献

- [1] I. C. Benea-Chelms et al., *Nat. Commun.*, **12**, 5982 (2021).
- [2] J. Zhang et al., *Opt. Express*, **25**, 30304 (2017).
- [3] J. Zhang et al., *Appl. Phys. Lett.* **113**, 231102 (2018).
- [4] H. Miyano et al., *OECC/PSC*, TuD3-2 (2022).
- [5] K. Ariu et al., *JSAP*, 22p-A101-7 (2022).
- [6] 宮野広基, 東京大学修士論文 (2023).
- [7] A. C. Overvig et al., *Nanophotonics*, **7**(6), 1157 (2018).

 CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.5] Code-sharing Session of 3.10 & 3.12

[23a-A308-1~10] CS.5 Code-sharing Session of 3.10 & 3.12

Yasutomo Ota(Keio Univ.), Masato Takiguchi(NTT)

Sat. Sep 23, 2023 9:15 AM - 12:00 PM A308 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

-
- [23a-A308-1] Investigation on AlGaO_x Cladding Layers Oxidation Width of Circular Defect in two-dimensional photonic crystal (CirD) Laser
 ○Rubing Zuo¹, Munenari Kataguchi¹, Hanqiao Ye¹, Ryousei Kinoshita¹, Masato Morifuji¹, Hirotake Kajii¹, Akihiro Maruta¹, Masahiko Kondow¹ (1.Osaka Univ.)
 9:15 AM - 9:30 AM
- [23a-A308-2] Gain Spectra in Highly-stacked Quantum Dot Laser Fabricated on InP(311)B Substrate with Bi Atom Irradiation
 ○Satoshi Yanase^{1,2}, Kouichi Akahane², Atsushi Matsumoto², Toshimasa Umezawa², Naokatsu Yamamoto², Yoriko Tominaga³, Atsushi Kanno^{2,4}, Tomohiro Maeda^{1,2}, Hideyuki Sotobayashi¹ (1.Aogaku Univ., 2.NICT, 3.Hiroshima Univ., 4.Nagoya Inst. of Tech.)
 9:30 AM - 9:45 AM
- △[23a-A308-3] High-power and high-efficiency operation of InP-based photonic-crystal surface-emitting laser with reflective metal mirror
 ○Yuhki Itoh^{1,2}, Takeshi Aoki^{1,2}, Kenshi Takada^{1,2}, Kosuke Fujii^{1,2}, Hiroyuki Yoshinaga^{1,2}, Naoki Fujiwara^{1,2}, Rei Tanaka^{1,2}, Makoto Ogasawara¹, Yusuke Sawada¹, Hideki Yagi¹, Masaki Yanagisawa¹, Masahiro Yoshida², Takuya Inoue², Menaka De Zoysa², Kenji Ishizaki², Susumu Noda² (1.Sumitomo Electric Industries, 2.Kyoto Univ.)
 9:45 AM - 10:00 AM
- [23a-A308-4] Very Narrow Linewidth of 1550nm-Band Quantum Dot DFB Laser
 ○Ryota Yabuki¹, Atsushi Matsumoto², Koichi Akahane², Siim Heinsalu¹, Yuichi Matsushima¹, Hiroshi Ishikawa¹, Katsuyuki Utaka¹ (1.Waseda Univ., 2.NICT)
 10:00 AM - 10:15 AM
- [23a-A308-5] Narrow intrinsic linewidth (~1 kHz) operation of photonic-crystal surface-emitting lasers
 ○Ryouhei Morita¹, Takuya Inoue¹, Masahiro Yoshida¹, Menaka De Zoysa¹, Kenji Ishizaki¹, Susumu Noda¹ (1.Kyoto Univ.)
 10:15 AM - 10:30 AM
- [23a-A308-6] Evaluation of α -parameter of 1.55-um-band QD-LD during lasing operation with external injection locking
 ○Atsushi Matsumoto¹, Shinya Nakajima¹, Toshimasa Umezawa¹, Kouichi Akahane¹ (1.NICT)
 10:45 AM - 11:00 AM
- [23a-A308-7] Realization of 10-Gbit/s-class transmission in free-space optical communication using watt-class continuous-wave photonic-crystal surface-emitting lasers

○Ryouhei Morita¹, Shota Ishimura², Takuya Inoue¹, Menaka De Zoysa¹, Kenji Ishizaki¹, Hidenori Takahashi², Masatoshi Suzuki^{2,3}, Susumu Noda¹ (1.Kyoto Univ., 2.KDDI Research, Inc., 3.Waseda Univ.)

11:00 AM - 11:15 AM

▲[23a-A308-8] Long-reach, 50Gb/s NRZ transmission of uncooled 1060nm single-mode coupled cavity VCSELs

○Babu Dayal Padullaparthi¹, Chang Ge¹, Liang Dong¹, Xiaodong Gu¹, Satoshi Shinada², Fumio Koyama¹ (1.Tokyo Institute of Technology, 2.NICT)

11:15 AM - 11:30 AM

[23a-A308-9] High-peak-power short-pulse self-evolving photonic-crystal lasers with band-edge frequency gradation

○Takuma Ueda¹, Kazuki Nigo¹, Takuya Inoue¹, Ryohei Morita¹, Susumu Noda¹ (1.Kyoto Univ.)

11:30 AM - 11:45 AM

[23a-A308-10] Increase of CW Power of GaN-based PCSEL with Large-Size Cavity

○Masahiro Jutori¹, Tomoaki Koizumi^{2,1}, Kei Emoto^{2,1}, Menaka De Zoysa¹, Shunsuke Morimoto¹, Kenji Ogawa¹, Takuya Inoue¹, Kenji Ishizaki¹, Masahiro Yoshida¹, Shumpei Katsuno¹, Susumu Noda¹ (1.Kyoto Univ., 2.Stanley Electric)

11:45 AM - 12:00 PM

2次元フォトニック結晶レーザの円形欠陥における AlGaO_xクラッド層の酸化幅に関する研究

Investigation on AlGaO_x Cladding Layers Oxidation Width of Circular Defect in two-dimensional photonic crystal (CirD) Laser

阪大院工,[○](D1) 左如氷, 瀧口宗誠, 葉漢嶠, 木下諒星, 森藤正人, 梶井博武, 丸田章博, 近藤正彦

Osaka Univ.,[○]R. Zuo, M. Kataguchi, H. Ye, R. Kinoshita,

M. Morifuji, H. Kajii, A. Maruta, M. Kondow

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

[序] 既存の情報通信システムでは、データの伝送と処理能力に限界を迎えた。我々はこの問題を解決するために2次元フォトニック結晶 (PhC) 円形欠陥 (CirD) を有する電流注入型レーザの研究・開発を行っている[1]。CirD共振器の中心にある AlGaAs ファンネルから電流を注入すると、Whispering Gallery Mode (WGM) が CirD 共振器外周で発生する。FDTD 法で計算した電場強度を図1に示す[2]。電場強度と空孔端との距離の関係を図2に示す。AlGaAs ファンネルの面積は、AlGaAs を AlGaO_x に酸化する時間を調整することで制御できる。酸化幅が大きくなると、発光閾値は低下する。一方、試料の電気抵抗が増加する。したがって、低電子抵抗と閾値を確保するためには、適切な酸化幅の範囲が重要である。図2より、360 nm ~ 400 nm の酸化幅が良いと推定される。本研究では、違う酸化幅をもつ CirD レーザを作製し、光励起による閾値パワーと酸化幅の関係から最適な酸化幅を実験的に明らかにした。

[実験方法と結果] InAs 量子ドットを含む GaAs コア層(220 nm)とその上下に AlGaAs クラッド層(550 nm)、一番上に GaAs コンタクト層(180 nm)を持つヘテロエピウエハに、EB リソグラフィで PhC パターンを描き、ドライエッチングを用いて PhC を作製した。次に、酸化時間を変更して水蒸気酸化を行い、AlGaAs を AlGaO_x に酸化させた。その後、試料のスペクトルと閾値パワーを測定した。ここでは、ポンプ光として 785 nm のレーザ光を使用した。最後に選択ドライエッチングを行い、図3に示す共振器の上面 SEM 像より酸化幅を測定した。図4に閾値パワーと酸化幅の関係を示す。適切な Q 値が 3000 程度である(文献2の図7参照)。この場合の閾値は、全面酸化の時の約 1.3 倍になる[2]。図4より、適切な酸化幅範囲は 360 nm ~ 410 nm である。これは上記推定値とほぼ一致する。

[謝辞] 本研究の一部は、科研費 JP23H01467, 文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」事業 (JPMXP1223OS1007) 及び ULVAC の支援を受けた。

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

[2] H. Ye, et al., physica status solidi (a), 218, 2000411 (2021)

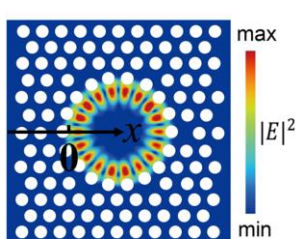


Fig. 1 WGM calculated by FDTD

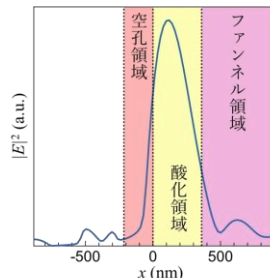


Fig. 2 Relationship between $|E|^2$ and x , which indicates the distance from the edge of air hole

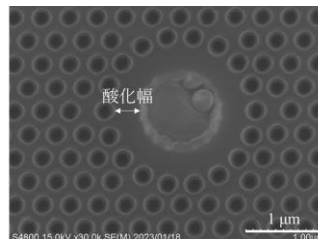


Fig. 3 SEM image of cavity after selective dry etching

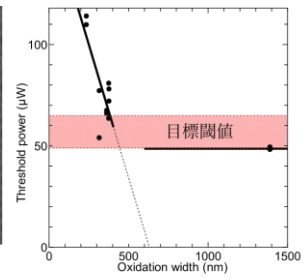


Fig. 4 Relationship between threshold power and oxidation width

Bi 照射 InP(311)B 上多重積層量子ドットレーザのゲインスペクトル

Gain Spectra in Highly-stacked Quantum Dot Laser Fabricated on InP(311)B Substrate with Bi Atom Irradiation

青学大理工¹, NICT², 広島大³, 名工大⁴ ○築瀬 智史^{1,2}, 赤羽 浩一², 松本 敦², 梅沢 俊匡²,
山本 直克², 富永 依里子³, 菅野 敦史^{2,4}, 前田 智弘^{1,2}, 外林 秀之¹
Aogaku Univ.¹, NICT², Hiroshima Univ.³, Nagoya Inst. of Tech.⁴ ○Satoshi Yanase^{1,2},
Kouichi Akahane², Atsushi Matsumoto², Toshimasa Umezawa², Naokatsu Yamamoto²,
Yoriko Tominaga³, Atsushi Kanno^{2,4}, Tomohiro Maeda^{1,2}, Hideyuki Sotobayashi¹

E-mail: c5622142@aoyama.jp

【はじめに】半導体量子ドット (QD) をレーザに応用した半導体量子ドットレーザ(QD-LD)はしきい値電流の温度依存性を大きく低下させる特徴を持つ。しかし QD-LD は通常の LD と同様にバンドギャップが温度依存性を持つため、動作温度の変化に伴って発光波長が変化する。この問題解決のため希薄ビスマス (Bi) 系 III-V 族化合物半導体の研究がされている。Bi による発振波長の温度無依存化のメカニズムはいまだ解明されていないがゲインスペクトルの変化が原因の一つである考えられている[1]。そこで本研究では Hakki-Paoli 法[2]を用いてゲインスペクトルを検討した。

【実験】試料の成長は分子線エピタキシー装置を用いて InP(311)B 上で行った。V 族原子の供給にはフラックスの急激な変化と正確な制御が可能なバルブドクランカーセルを用いた。InP(311)B 上に 100 nm の n-InP バッファ層、50 nm の InGaAsP 光導波路層を成長後、歪補償技術による InAs 量子ドットを 20 層積層させた。この時、Bi 照射有り無し試料を成長した。その後、それぞれの試料に対して 50 nm の InGaAsP 光導波路層、1500 nm の p-InP、100 nm の p-InGaAs コンタクト層を成長させてレーザ構造を形成し、紫外線露光装置を用いて電極幅 50 μm のブロードエリアレーザをリフトオフプロセスにて作製した。レーザ共振器はへき開を用いて、600 μm から 1400 μm の範囲で作製した。共振器長 L=800 μm に対して 20°C におけるスペクトル測定を行い、以下の式で表される Hakki-Paoli 法を用いてゲインスペクトル $\Gamma G(\lambda)$ を導出した。ここで P_i と P_{i+1} は連続した縦モードの出力であり、 V_i は P_i 、 P_{i+1} に対応する波長間における出力の最小値である。また、 R はレーザ端面の反射率を表している。

$$\gamma_i = \frac{P_i + P_{i+1}}{2V_i}, \quad \Gamma G(\lambda) = \ln\left(\frac{\gamma_i - 1}{\gamma_i + 1}\right) + \frac{1}{L} \ln\left(\frac{1}{R}\right)$$

【結果】図 1、2 に Bi 照射なしと照射ありの試料に対して注入電流をしきい値電流値 I_{th} の 0.95 倍とした時のゲインスペクトル特性と 3mW 時の発振波長を示す。ゲインスペクトルのピーク波長と発振時のピーク波長が一致しているため、Hakki-Paoli 法によってゲインスペクトルが正しく導出できたと考えられる。今後は、Hakki-Paoli 法を用いてゲインスペクトルの温度依存性を導出し、Bi による温度無依存化のメカニズム解明を目指す。

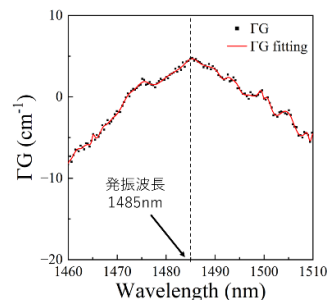
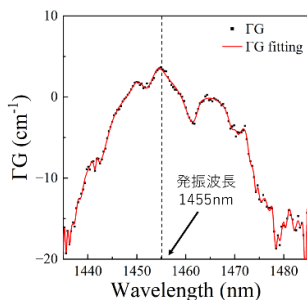


図 1 ゲインスペクトル(Bi 照射なし) 図 2 ゲインスペクトル(Bi 照射あり)

参考文献[1] S. Yanase *et al.*, *Opt. Lett.*, **48** (2023) 3287. [2] B. W. Hakki *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **46** (1975) 1299.

金属反射ミラーを有する InP 系フォトニック結晶レーザーの高出力・高効率動作

High-power and high-efficiency operation of

InP-based photonic-crystal surface-emitting laser with reflective metal mirror

住友電工¹, 京大院工² °伊藤 友樹^{1,2}, 青木 健志^{1,2}, 高田 賢志^{1,2}, 藤井 康祐^{1,2}, 吉永 弘幸^{1,2},

藤原 直樹^{1,2}, 田中 礼¹, 小笠原 誠¹, 澤田 祐甫¹, 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. Takada^{1,2}, K. Fujii^{1,2}, H. Yoshinaga^{1,2},

N. Fujiwara^{1,2}, R. Tanaka¹, M. Ogasawara¹, Y. Sawada¹, 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 (Photonic-Crystal Surface-Emitting Laser) は、活性層近傍に設けた2次元フォトニック結晶 (PC) による2次元共振を利用した面発光型の半導体レーザーである。原理的に、大面積でコヒーレントなレーザー発振が得られるため、高出力・高ビーム品質なレーザーが作製可能である^[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、光通信波長帯(1.3~1.55 μm)のInP系PCSELを検討している^[2,3]。これまでに、二重格子PCの導入により室温CW駆動において、200 mWを超える高出力かつ単一モード動作を実証してきた^[3]。今回は、InP系PCSELに金属ミラーを導入し、さらなる高光出力・高スロープ効率化を実現したので、その結果について報告する。

【構造と特性】我々のPCSELの特徴は、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ある。これにより活性層へのドライエッチングダメージを回避している。また、100 nm以下のInPスペーサー層を再成長し、空孔を維持した状態で平坦化を行うことで、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、PC層内に強く光を閉じ込めることが可能となる。PCには楕円と円形からなる二重格子PCを採用し、垂直方向の放射を高めている。PC層から出射面の反対方向へと放射される光を、出射面へ戻すための金属ミラーを導入した(Fig. 1)。Fig. 2に、作製したデバイス(アパーチャー径: 200 μm)の25°CにおけるCW駆動時の電流-光出力(I - L)と電力変換効率(WPE)の測定結果を示す。しきい値電流 290 mA (しきい値電流密度 0.92 kA/cm^2)で発振が得られ、最大出力とWPEはそれぞれ、397 mWと19.2%であった。これは、金属ミラーを用いない従来のデバイスに対して約2倍の光出力及びWPEの向上である^[3]。また、スロープ効率についても従来比、約2倍の0.38 W/Aであった。本デバイスの発振スペクトルと遠視野像をFig. 3に示す。駆動電流によらない安定した単一モード動作により、49 dBを超える高い副モード抑圧比(SMSR)と、発散角($1/e^2$) 1.2°のPCSEL特有の狭幅な単峰ビームを観測した。

【謝辞】本研究の一部は、戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)の援助を受けた。

【参考文献】[1] S. Noda et al., IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 23 (2017) 4900107. [2] Y. Itoh et al., Opt. Express 30 (2022) 29539. [3] Y. Itoh et al., Proc. of SPIE 12440 (2023) 124400E.

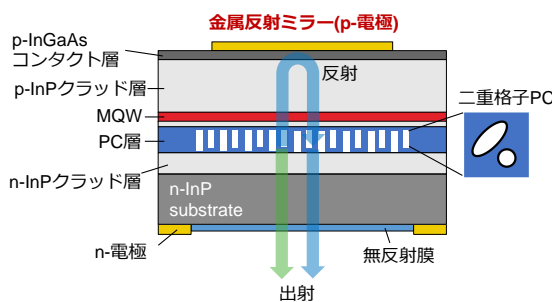


Fig. 1. Schematic of fabricated PCSEL.

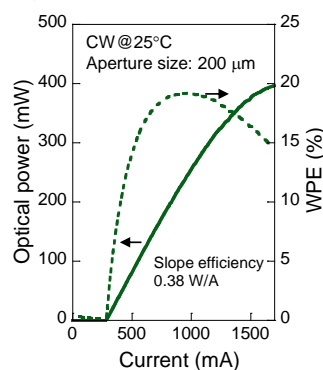


Fig. 2. I - L characteristics and WPE under CW conditions at 25°C.

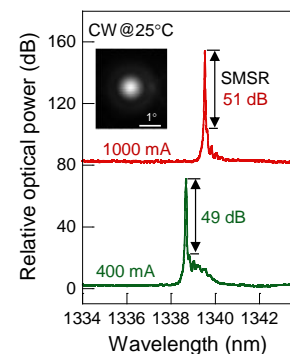


Fig. 3. Lasing spectra under CW condition at 25°C. Inset shows far-field pattern at 1000 mA.

1550nm 帯量子ドット DFB レーザの狭スペクトル線幅特性

Very Narrow Linewidth of 1.55 μm -Band Quantum Dot DFB Laser

早大理工¹, 情報通信研究機構² $\circ(M2)$ 矢吹 諒太¹, 松本 敦², 赤羽 浩一²,

ヘインサル・シーム¹, 松島 裕一¹, 石川 浩¹, 宇高 勝之¹

Waseda Univ.¹, NICT² $\circ(M2)$ R. Yabuki¹, A. Matsumoto², K. Akahane²,

S. Heinsalu¹, Y. Matsushima¹, H. Ishikawa¹, and K. Utaka¹

E-mail: ryota0000@akane.waseda.jp

[はじめに] 近年デジタルコヒーレント方式による高速・大容量光通信が普及する中で、一層狭スペクトル線幅な光源の開発が重要視されており、量子ドット (QD: Quantum Dot) を用いた狭線幅半導体レーザが着目されている[1]。本稿では、1550nm 帯量子ドット DFB-LD にて 20 kHz という極めて優れた特性が得られたので報告する。

[実験] 実験に用いた QD ウェハは、InP(311)B 基板上に歪み補償技術を用いて成長した 14 層 1550nm 帯 InAs / InGaAlAs QD 構造である[2]。作製された QD-DFB-LD の模式図を Fig.1 に示す。リッジ導波路は実効幅約 3.0 μm 、共振器長 1000 μm であり、回折格子は側面に形成され、4 分の 1 λ シフトを導入した。両端面にはそれぞれ AR、HR コーティングを施した。

[結果] Fig.2 は QD-DFB-LD の室温での CW 動作時の I-V 及び I-L 特性であり、しきい値電流は $I_{th} = 17.3\text{mA}$ (J_{th} は約 0.49 kA/cm^2) と低いしきい値特性が得られている。また、Fig.3 はしきい値電流直上 ($I = 22\text{mA}$, $I/I_{th} = 1.27$) で動作させたときの自己遅延ヘテロダイン検波方式を用いたスペクトル線幅の測定結果である。ローレンツ関数によるフィッティングにより見積もられたその線幅は 20kHz であり、極めて狭いスペクトル幅特性を示した。

[謝辞] 本研究成果の一部は、国立研究開発法人情報通信研究機構の委託研究により得られ

たものである。

[参考文献]

[1] A. Becker, et al., CSW2019, ThA1-7, 2019.

[2] K. Akahane, et al., Photon. Tech. Lett., 22, 103-105, 2010.

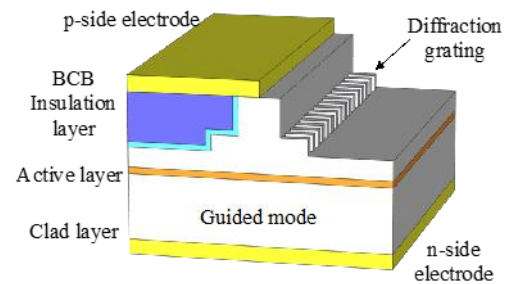


Fig.1 Schematic structure of QD-DFB-LD.

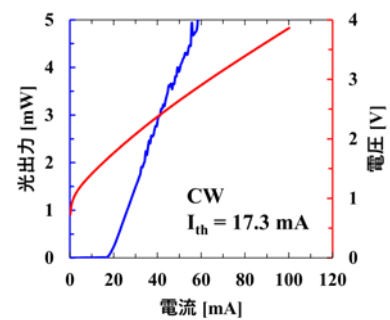


Fig.2 I-L and I-V characteristics of QD-DFB-LD.

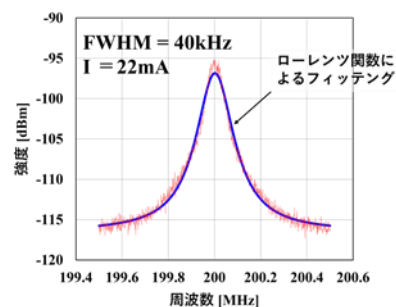


Fig.3 Spectral linewidth of QD-DFB-LD.

フォトリック結晶レーザーの狭固有スペクトル線幅(~1kHz)動作

Narrow intrinsic linewidth (~1 kHz) operation of photonic-crystal surface-emitting lasers

京大院工 °森田遼平, 井上卓也, 吉田昌宏, De Zoysa Menaka, 石崎賢司, 野田進

Kyoto Univ. °R. Morita, T. Inoue, M. Yoshida, M. De Zoysa, K. Ishizaki, S. Noda

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

[序] 半導体レーザーの狭線幅化は、コヒーレント光通信や高感度光センシング応用において重要である。一般に、半導体レーザーの固有スペクトル線幅は、ランダムな自然放出光がコヒーレントなレーザー光に結合することにより決定されるため、共振器内のコヒーレント光子数を増大させることが狭線幅化に重要である。従って、大面積での高出力単一モード動作が可能なフォトリック結晶レーザー (PCSEL)¹⁾は、原理的に極めて狭い固有線幅 (≤ 1 kHz) を実現できると期待される²⁾。我々はこれまで、直径 250 μm の発振領域をもつ PCSEL の連続波 (CW) 動作時の周波数雑音スペクトルの実験的な評価を行い、70 kHz 未満の固有スペクトル線幅の観測に成功した²⁾。今回、直径 1 mm の発振領域をもつ PCSEL について、CW 動作時の周波数雑音スペクトルの評価を行い、~1 kHz という極めて狭い固有スペクトル線幅を観測することに成功したので報告する。

[測定結果] 評価には、二重格子フォトリック結晶³⁾を内蔵する直径 1 mm、閾値利得 $J_{\text{th}} \sim 0.36$ A/cm² の PCSEL を用いた。先行研究²⁾にて線幅評価を行った直径 250 μm PCSEL ($J_{\text{th}} \sim 0.63$ A/cm²) と比較して、発振領域面積の拡大と閾値利得の低減を行ったことにより、共振器内部の光子数が大幅に増加し、狭線幅化が可能になるものと期待される。本 PCSEL における、CW 動作 (20°C) 時の電流-光出力特性を測定したところ、Fig. 1(a)に示すように、10.0 A 注入時に 5 W 以上の光出力が得られた。また、8.0 A 注入時の遠視野像を Fig. 1(b)に示すが、ビーム拡がり角 $\theta_{1/e^2} \sim 0.10^\circ$ ($M^2 \sim 1.5$) の単峰な遠視野像が得られた。続いて、注入電流 8.0 A の際に、線幅測定装置 (HighFinesse, LWA-1k-780) を用いて測定した周波数雑音スペクトルを Fig. 1(c)に示す。低周波数領域 (<1 MHz) における雑音は、 $1/f$ 雑音や、駆動に用いた直流電源固有の雑音に由来するものである。一方、高周波数領域 (>1 MHz) においては、自然放出光雑音に由来する平坦な雑音パワースペクトルが得られた。高周波数領域の雑音パワー密度 S_0 から $\Delta\nu_{\text{int}} = \pi S_0$ として求めた固有線幅⁴⁾の注入電流依存性を Fig. 1(d)に示す。電流を増加させるにつれて、共振器内光密度の上昇によって固有線幅が減少し、注入電流 8.0 A にて、測定装置の測定下限 (~1 kHz) に相当する極めて狭い固有線幅 ($\Delta\nu_{\text{int}} < 1.23$ kHz) が得られた。本結果は、高輝度性に加え、コヒーレンスの観点からも、PCSEL が極めて理想的な半導体レーザーであることを物語っている。詳細は当日報告する。

[謝辞] 評価デバイスの作製に際して多大なご協力を頂いた三菱電機の榎氏に感謝する。本研究は、科研費 (22H04915, 20H02655) の支援を受けた。**[文献]** 1) M. Yoshida *et al.*, *Nat. Mater.* **18**, 121 (2019). 2) T. Inoue *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **122**, 051101 (2023). 3) T. Inoue *et al.*, *Nat. Commun.* **13**, 3262 (2022). 4) G. D. Domenico *et al.*, *Appl. Opt.* **49**, 4801 (2010).

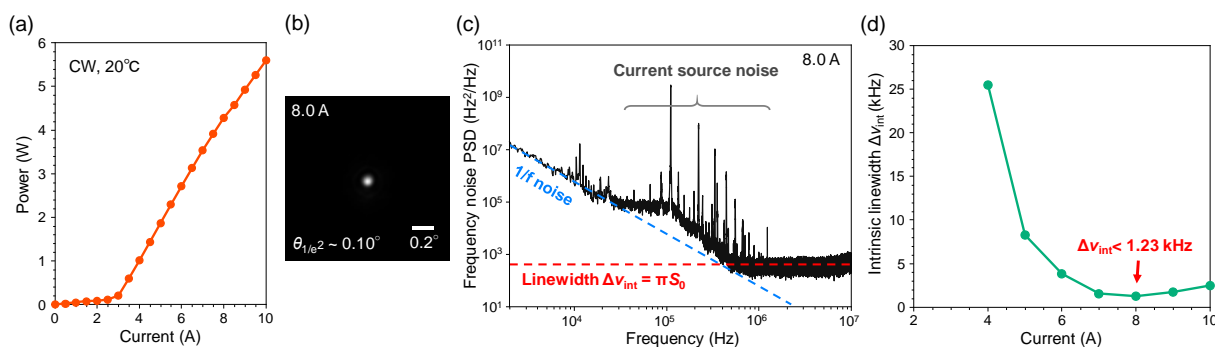


Fig. 1. (a)(b) Measured I-L characteristic and far-field pattern of a 1-mm-diameter PCSEL. (c) Measured frequency noise power spectrum at an injection current of 8.0 A. (d) Measured intrinsic linewidth as a function of the injection current.

外部注入同期法を用いた 1.55 μm 帯量子ドットレーザの発振中における α パラメータの評価

Evaluation of α -parameter of 1.55- μm -band QD-LD during lasing operation with external injection locking

情通機構, °松本 敦, 中島 慎也, 梅沢 俊匡, 赤羽 浩一

NICT, °A. Matsumoto, S. Nakajima, T. Umezawa, and K. Akahane

E-mail: a-matsumoto@nict.go.jp

【研究背景】 量子ドット(QD: Quantum Dot) 構造を有する LD (laser diode) や SOA(Semiconductor optical amplifier)、またそれを利得媒質としてシリコンフォトニクスに用いた光集積回路は、キャリアの三次元的な閉じ込め効果による低閾値電流や高い温度安定性など、優れた特性が報告されている[1]。我々はこれまでに 1.55 μm 帯の QD 光デバイスの研究を行い、その良好な特性を示してきたが[2]、本研究では、QD 光デバイスのさらなる高性能化のために、外部注入同期法を用いて 1.55 μm 帯量子ドット Fabry-Perot(FP)レーザ(QD-FP-LD)のレーザ発振状態における α パラメータの値を評価した。その値は 0.58 と低く、比較として用いた市販の典型的な MQW(多重量子井戸: Multi quantum well) LD の値より低かったので報告する。

【実験結果・考察】 今回の実験に使用した QD-FP-LD は、InP(311)B 基板上に InAs QD/InGaAlAs ペアを 15 層、20 nm 周期で積層したものをを用い、その閾値電流は 15 mA であった。レーザ発振中の α パラメータは外部光により注入同期した状態の周波数 detuning により、(1)式を用いて見積ることができる[3]。 $\alpha_H = \sqrt{\Delta\omega_{\min}^2/\Delta\omega_{\max}^2 - 1}$, (1).

図 1 (a) は、 $I = 30$ mA で QD-FP-LD を駆動した時に、外部注入光の波長を変化させた場合の出力光のスペクトルマッピングであり、図 1 (b) は、図 1 (a) において $\lambda = 1554.970$, 1554.9000 nm と外部注入光無しの場合の光スペクトルの結果である。完全に注入同期状態になると、図 1 (b) の青色の光スペクトルのように、FP モードが抑圧され、単一モードの状態となる。図 1 (a) に示したグラフから、QD-FP-LD の注入同期の周波数範囲は約 6.5 GHz と見積もられた。一方で、同程度の光出力強度の駆動条件における MQW-LD の周波数範囲は約 18.2 GHz であった。上述したように、 α の値は図 1 の測定結果において、 $\Delta\omega_{\min}$ 、 $\Delta\omega_{\max}$ の値から見積ることができる。図 2 は駆動電流を変化させた場合における QD-FP-LD と MQW-FP-LD の α パラメータの値を示したものである。MQW-FP-LD と比較すると QD-FP-LD では注入同期の周波数範囲は小さく、さらに $\Delta\omega_{\min}$ 、 $\Delta\omega_{\max}$ の比も小さい。そのため、QD の α パラメータの値は小さく、今回の実験においては最小値の場合で α の値は 0.58 という値が得られた。MQW-FP-LD は 1.5 以上の値となっていることから、QD 構造の LD では α の値は非常に小さく、戻り光に対して非常に高い耐性があり、また狭線幅、低チャープといった特性に寄与することが期待される。

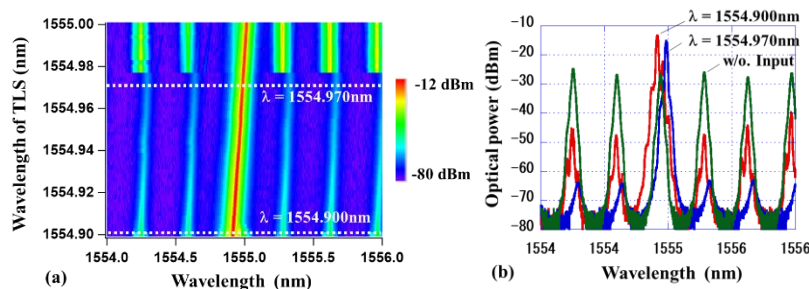


Fig.1 (a) The spectrum mapping of the QD-FP-LD during changing wavelengths of the tunable laser for external injection when it was driven at $I = 30$ mA. (b) Optical spectra of the QD-FP-LD without external injection light and with the laser whose wavelengths were 1554.900 nm and 1554.970 nm.

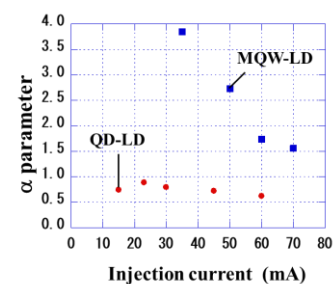


Fig.2 The value of α dependent on injection current.

【謝辞】 本研究の一部は、総務省の「無線・光相互変換による超高周波数帯大容量通信技術に関する研究開発」(JPJ000254)、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) (JPNP20017)、の委託業務 (JPNP20017) の一環として実施された。

【参考文献】

- [1] A. Malik, et al., Photon. Research, Vol.8, No.10, pp. 1551-1557, 2020.
- [2] 松本他, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会, 16p-B409-3, 2023.
- [3] G. Liu, et al., PTL, Vol. 13, No. 5, pp. 430-432, 2001.

ワット級 CW フォトニック結晶レーザーを用いた 10 Gbit/s 級自由空間光通信の実現

Realization of 10-Gbit/s-class transmission in free-space optical communication
using watt-class continuous-wave photonic-crystal surface-emitting lasers

京大院工¹, KDDI 総合研究所², 早大理工³, ◯森田遼平¹, 石村昇太², 井上卓也¹,

De Zoysa Menaka¹, 石崎賢司¹, 高橋英憲², 鈴木正敏^{2,3}, 野田進¹

Kyoto Univ.¹, KDDI Research, Inc.², Waseda Univ.³, ◯R. Morita¹, S. Ishimura², T. Inoue¹,

M. De Zoysa¹, K. Ishizaki¹, H. Takahashi², M. Suzuki^{2,3}, S. Noda¹

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

[序] フォトニック結晶レーザー (PCSEL) は、大面積で単一モード動作が可能のため、高出力(>W)・高ビーム品質動作を実現可能な半導体レーザーである¹⁾。この特長をそのままに、高速(>GHz)な直接変調動作が可能となれば、衛星間通信を含む様々な自由空間通信への展開が期待される。我々はこれまで、PCSEL において数 GHz~数 10GHz 級の直接変調帯域が実現可能であることを解析により明らかにするとともに²⁾、発振領域 500 $\mu\text{m}\Phi$ PCSEL の W 級疑似連続波 (QCW) 動作により、5 Gbit/s 相当の自由空間光通信に成功している³⁾。今回、光源設計および駆動系の改良により、W 級連続波 (CW) 動作において、10 Gbit/s 級の自由空間光通信に成功したので報告する。

[実験結果] 実験に用いた PCSEL には、発振領域 500 $\mu\text{m}\Phi$ で単一モード動作可能な二重格子フォトニック結晶¹⁾を導入し、さらに、駆動時の発熱による屈折率分布を補償するため、フォトニック結晶の格子定数に空間分布を与えた温度補償構造⁴⁾を導入した。放熱治具への実装後の PCSEL の CW 駆動時の電流-光出力特性は Fig. 1(a)に示す通りであり、3 A 注入時に W 級の光出力が得られた。また、ネットワークアナライザにより測定した周波数応答特性を Fig. 1(b)に示す。1 GHz 以下の帯域は、小信号の重畳に用いたバイアス T の影響でカットオフされているが、電流の増加とともに緩和振動周波数が増大し、4 GHz 程度まで変調可能であることがわかる。伝送実験に用いた測定系を Fig. 2(a)に示す。任意波形発生器で出力した直交振幅変調 (QAM) 信号 (振幅 300 mA_{pp}, 変調レート 2.0 Gbaud) を 3.2A の直流電流 (光出力 1 W=30 dBm) に重畳し、50 Ω 伝送線路を介して PCSEL へ入力した。次に、長距離伝送時のビーム拡がりによる光パワー密度の減衰を模擬するため、出射光をビームスプリッタおよび可変型減衰フィルターで減衰させながら、受光デバイス (PD) に入力した。その後、PD の出力信号波形をオシロスコープで取得し、オフラインで復調処理を行った。受光パワーを変化させながら、信号品質を表すエラーベクトル振幅 (EVM) を評価した結果を Fig. 2(b)に示す。挿入図に示すように、受光パワーを 2~3 桁程度減衰させ、10 dBm 以下としても、EVM は 10%以下となり、変調点数 64 QAM (12 Gbit/s 相当) 及び 256 QAM (16 Gbit/s 相当) での伝送に成功した。また、受光パワーをさらに 1 桁以上減衰させた場合 (~ -5 dBm) でも QPSK (=4 QAM) (4 Gbit/s 相当) での伝送が実現しており、PCSEL が長距離 (>km) 自由空間光通信に適用可能であることが示唆される。詳細は当日報告する。

[謝辞] 本研究は、科研費 (22H04915, 20H02655) の支援を受けた。 **[文献]** 1) M. Yoshida *et al.*, *Nat. Mater.* **18**, 121 (2019). 2) 森田 他, 2023 年春応物, 17p-A303-1 (2023). 3) S. Ishimura *et al.*, *J. Light. Technol.* DOI: 10.1109/JLT.2023.3273563 (2023). 4) S. Katsuno, *et al.*, *Opt. Express.* **29** 25118 (2021).

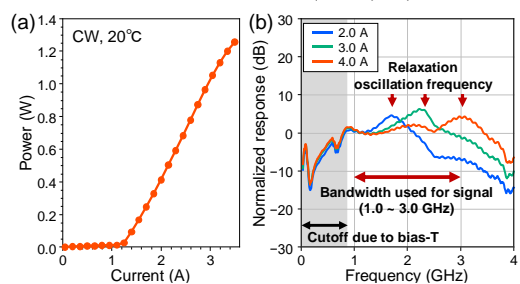


Fig. 1. (a)(b) Measured I-L characteristic and frequency response of a mounted 500 μm -diameter PCSEL.

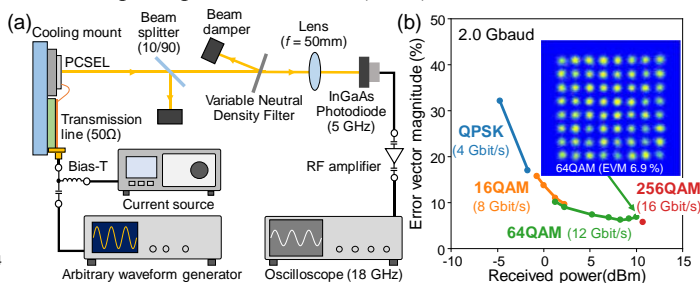


Fig. 2. (a) Schematic measurement setup. (b) Error vector magnitude as a function of the received power, and constellation plot of 64-QAM signal.

Long-reach, 50Gb/s NRZ transmission of uncooled 1060nm single-mode coupled cavity VCSELs

Babu Dayal Padullaparthi¹, Chang Ge¹(D), Liang Dong¹(D), Xiaodong Gu¹, Satoshi Shinada²
and Fumio Koyama¹

¹Institute of Innovation Research, Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta, Yokohama 226 8503, Japan

²NICT, 4-2-1 Nukuikitamachi, Koganei, Tokyo 184-8795, Japan

E-mail: babudayal.p.aa@m.titech.ac.jp

Introduction: High performance (S21 bandwidth > 25GHz) multi-mode NIR VCSELs are in demand for high speed and high capacity datacenter optical interconnects [1]. Due to short MMF link lengths up to 100m, and by exploiting the lower dispersion of standard 1300nm SMF (G652) at 1060nm, authors demonstrate a surface-engineered, coupled-cavity VCSEL [2, 3] at 50Gb/s NRZ transmission for the first time up to 2km at 85°C. Thanks to the single transverse mode control in oxide aperture as large as 7 μ m and high differential gain from In_{0.28}Ga_{0.72}As Quantum wells in metal-aperture, shallow surface relief structure based VCSEL that pushed modulation bandwidths >26GHz back-to-back (BTB) and >30GHz under 2km SMF transmission at 25°C.

Device structure and results: The intra-cavity metal-aperture VCSEL has a 5-pair top SiO₂/Ta₂O₅ DBR, a 4 pair modulation doped Al_{0.92}Ga_{0.08}As/GaAs semiconductor DBR, half-lambda cavity active region with 5x In_{0.28}Ga_{0.72}As Quantum wells and 4x GaAs_{0.9}P_{0.1} barriers, a 34-pair modulation doped bottom (6x Al_{0.92}Ga_{0.08}As/GaAs and 28x AlAs/GaAs) DBR and other phase-matching layers grown on SI-GaAs substrate. A surface relief of 4 μ m diameter with depth of 30nm was wet etched on a 18 μ m mesa with an oxide aperture 7 μ m. Besides small mesa, parasitic capacitance was also reduced by using a 3 μ m polyimide layer under p- & n-pads. Figure 1(a) shows over temperature L-I characteristics through MMF that shows a maximum single mode power >3.5mW@9mA with large area photodetector. Figure 1(b) shows temperature dependent optical spectra with SMSR consistency >40dB. Figure 1(c) shows S21 response recorded at 55C with -3dB bandwidth [10*log₁₀(S21)] >30GHz after 2km SMF transmission. Figure 2 (a-c) and (d-f) show temperature dependence 50Gb/s BTB and 2km NRZ transmissions respectively with fixed taps with equalization at extension ratio 3-4dB and signal error rate under FEC limit (< 7.0 E-6).

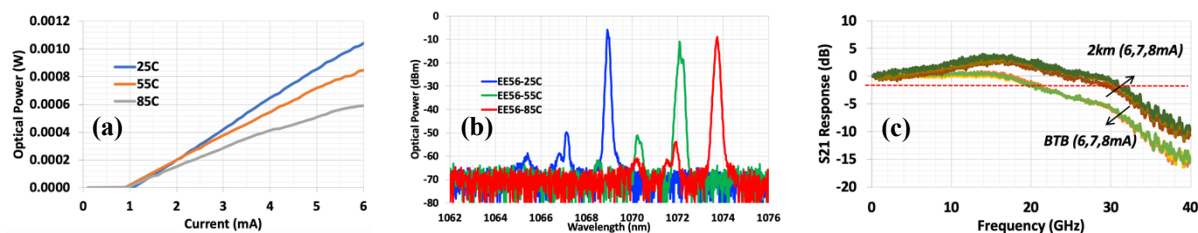


Fig 1: Temperature dependent (a) L-I Characteristics, (b) Optical spectra and (c) S21 response at 55C

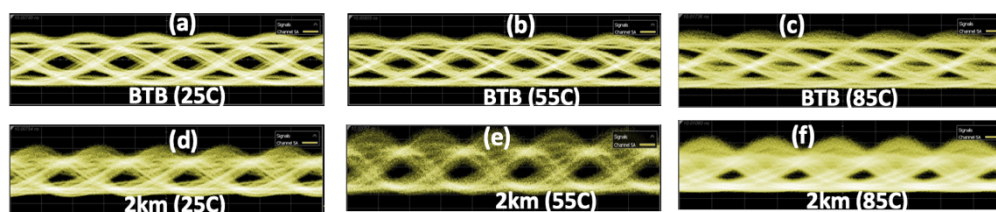


Fig 2: Temperature dependent 50Gb/s NRZ transmissions for (a-c) BTB and (d-f) 2km

Conclusions: We demonstrate a surface-engineered, coupled-cavity 1060nm VCSEL with 50Gb/s NRZ transmission up to 2km at 85°C with equalization under FEC limit for the first time. Temperature dependent optical spectra show SMSR >40dB, and S21 response with -3dB bandwidth >30GHz after 2km SMF transmission at 55°C.

Acknowledgements: The authors thank project funding from (NEDO JPNP20017).

References:

- [1] M. V. R. Murty et al., "Development and Characterization of 100 Gb/s Data Communication VCSELs," *IEEE Photon. Technol. Lett.*, **33** (16) 812-815 (2021).
- [2] H. Ibrahim, et.al., "1060nm single-mode metal aperture VCSEL array with transverse resonance for 5km single-mode fiber transmission," OFC 2021, Tu5C.1 (2021).
- [3] C. Ge et al, "1060nm Single-mode Intra-cavity Metal-aperture VCSEL for over 2km Standard 1300nm SMF Transmission", STh4Q.2, CLEO (2023).

大域的バンド端周波数勾配を導入したフォトニック結晶 レーザーによる高ピーク出力・短パルス発振

High-peak-power short-pulse self-evolving photonic-crystal lasers with band-edge frequency gradation

京大院工 ○上田拓磨、二五和樹、井上卓也、森田遼平、野田進

Kyoto Univ. °T. Ueda, K. Nigo, T. Inoue, R. Morita, S. Noda

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

[序] フォトニック結晶レーザー(PCSEL)¹⁾は、2次元フォトニック結晶の特異点(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、PCSELに可飽和吸収領域を導入することで高ピーク出力・短パルス動作の実証に成功するとともに²⁾、大域的バンド端周波数勾配を導入したPCSELを提案し、ピーク出力80W級の短パルス動作の実証にも成功している³⁾。また、後者に対して、利得領域端部のバンド端周波数勾配の形状を変更することで、さらに高ピーク出力なパルス発振が実現可能であることを数値解析によって明らかにしている⁴⁾。今回、上記の設計に基づきバンド端周波数勾配の形状を改良した短パルスPCSELの作製を行い、ピーク出力220W超の安定な自励パルス発振を得ることに成功したので報告する。

[デバイス構造] 今回と以前の作製デバイス⁵⁾のフォトニック結晶層の格子定数勾配分布の比較をFig.1に示す。今回の構造は、従来よりも利得領域端部①およびその外側の吸収領域②の格子定数変化量を増大させている⁴⁾。①の勾配の増加により、利得領域端部の余剰キャリアによる屈折率変化が引き起こすバンド端周波数の変化を、予め補償することが可能となる。一方、②の工夫により、発振開始時に吸収領域に光が漏れ出す初期損失が増加し、 Q スイッチング効果の増強によるピーク出力の向上が期待される。評価においては、高振幅矩形パルス電流(パルス幅150ns)を注入して光源を駆動し、発光強度分布の時間変化をストリークカメラによって撮影した。

[結果] 注入電流50Aにおける光源 u 軸方向の発光強度分布の時間変化、およびそれを空間方向に積分して得られた光出力の過渡応答波形について、今回作製した光源の測定結果をFig.2(a)に、比較として以前のデバイスの測定結果⁵⁾をFig.2(b)に示す。今回の作製光源では、以前の光源で観測されたパルス発振の分裂が抑制され、高電流注入時にも安定なパルス発振が得られた。今回の作製構造において得られたピーク出力の電流依存性をFig.3に示す。パルス発振の安定化に伴い、注入電流60Aまでピーク出力が単調に増大し、最大でピーク出力220W超の短パルス発振が得られた。詳細は当日報告する。本研究の一部は科研費(20H02655, 22H04915)の支援を受けた。

[文献] 1) Imada *et al.*, Appl. Phys. Lett. **75**, 316 (1999). 2) Morita *et al.*, Nat. Photon. **15**, 311 (2021). 3) Inoue *et al.*, Nat. Commun. **14**, 50 (2023). 4) 二五他, 2023 春応物 17a-D215-4. 5) 二五他, 2022 秋応物 21a-A101-5.

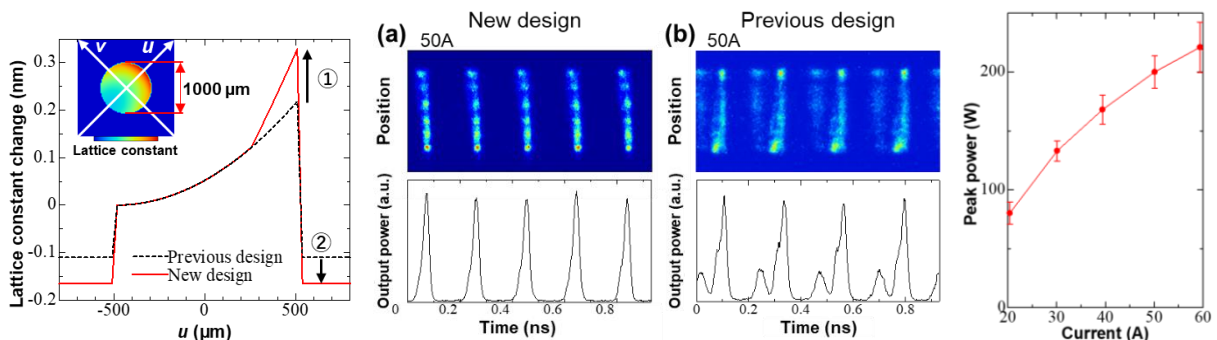


Fig.1. Lattice-constant distributions of new design (red) and previous design (black) of self-evolving PCSELs.

Fig.2. (a)(b) Temporal change of emission intensity distributions in the u -axis direction and spatially integrated temporal waveforms at an injection current of 50.0A.

Fig.3. Current dependence of the peak power of the new self-evolving PCSELs.

GaN 系 PCSEL の共振器面積拡大による CW 高出力化

Increase of CW Power of GaN-based PCSEL with Large-Size Cavity

京大院工¹, スタンレー電気² ○十鳥雅弘¹, 小泉朋朗^{2,1}, 江本溪^{2,1}, De Zoysa Menaka¹, 森本俊介¹, 小川健志¹, 井上卓也¹, 石崎賢司¹, 吉田昌宏¹, 勝野峻平¹, 野田進¹
 Kyoto Univ.¹, Stanley Electric CO., LTD.², ○Masahiro Jutori¹, Tomoaki Koizumi^{2,1}, Kei Emoto^{2,1},
 Menaka De Zoysa¹, Shunsuke Morimoto¹, Kenji Ogawa¹, Takuya Inoue¹, Kenji Ishizaki¹,
 Masahiro Yoshida¹, Shumpei Katsuno¹, Susumu Noda¹
 E-mail: juttori@qoe.kuee.kyoto-u.ac.jp, snoda@kuee.kyoto-u.ac.jp

【序論】フォトニック結晶レーザー(PCSEL)は、活性層近傍に配置したフォトニック結晶をレーザー共振器として用いる、高出力・高ビーム品質の両立が可能な光源であり、加工用レーザー光源、センシング用光源等として期待されている。我々は、このようなPCSELの材料系として、GaNをも加え、青紫領域のPCSELの開発を進めて来た。GaN系PCSELでは、2008年に、パルス駆動でのレーザー発振を実現して以来¹⁾、デバイスの作製技術と構造設計の改良を進め、共振器サイズ300 μm において、パルス駆動2W級動作に成功している²⁾。また、CW駆動への展開も行い、300 μm デバイスにおいて、出力 \sim 320mW、ビーム品質 $M^2\sim 1$ の実現に成功している³⁾。CW駆動時には、温度上昇により、電流注入部の共振器のバンド端周波数が、電流を注入しない周囲部と比べて低くなり、発振モード(バンド端B)の面内損失が増大する⁴⁾。そこで、前回より、共振器サイズを増大することで面内損失を低減し、CW動作時の閾値電流密度の低減と光出力増大を進めている。今回、その詳細検討とともに、共振器内の温度分布等の評価も行ったので報告する。

【結果】図1の黒線に従来の共振器サイズ300 μm と、赤線に共振器サイズを400 μm と大きくしたPCSELの面内損失の計算結果を示す。同図より、発振器サイズ400 μm とすることで、面内損失が大きく低減できることが分かる。これを踏まえて、400 μm のデバイスを作製し、ヒートシンクに実装した。図2には、20 $^{\circ}\text{C}$ でのCW時のレーザー特性を示す。同図より、閾値電流2.0A、すなわち閾値電流密度、1.6kA/cm²が得られ、従来の共振器サイズ300 μm デバイス³⁾の閾値電流密度(5.3kA/cm²)と比べて大幅に低減出来ていることが分かる。その結果、光出力は、800mWまで増大し、単峰ビーム・単一波長を維持しつつ、高出力が実現出来たと言える。続いて、このような高出力PCSELのバンド端周波数の空間分布を測定して、共振器内の温度分布を見積もった⁵⁾。図3には、注入電流4A時の測定結果を示しており、面内でほぼ平坦な共振波長分布、つまり、ほぼ平坦な温度分布が得られていることが分かった。これは、GaAs系PCSELに比べ、GaN系PCSELでは、熱の拡散効果が高いために、面内温度分布がほぼ一定に保たれるようになったものと考えられる。また、注入電流4Aでの共振器内部の温度測定より、熱抵抗は、2.2K/W程度と見積もられた。詳細は当日報告する。

【謝辞】本研究の一部は、SIP及び特別推進研究(22H04915)を受けた。【文献】1) H. Matsubara *et al.*, Science **319**, 445 (2008). 2) 廣瀬 他, 応物春, 25p-E303-12 (2022). 3) K. Emoto, *et al.*, Communications. Materials **3**, 72 (2022). 4) 十鳥 他, 応物秋, 21p-A101-7 (2022). 5) 勝野 他, 応物春, 16p-A501-10 (2022).

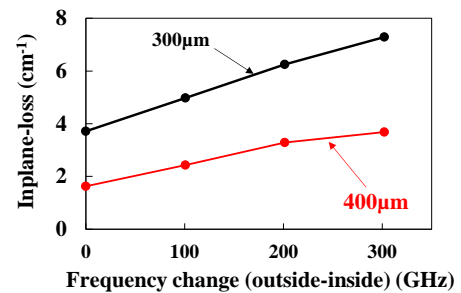


図1: 共振器内部と外部の周波数差と面内損失

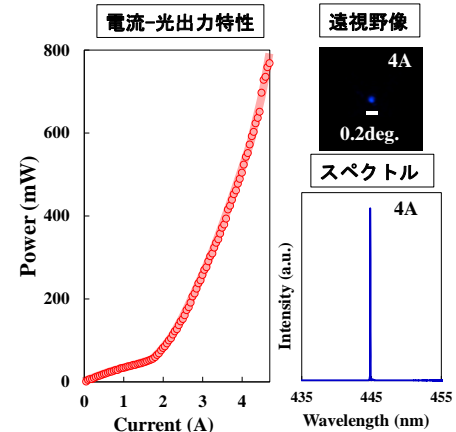


図2: 直径400 μm デバイスのCW動作特性

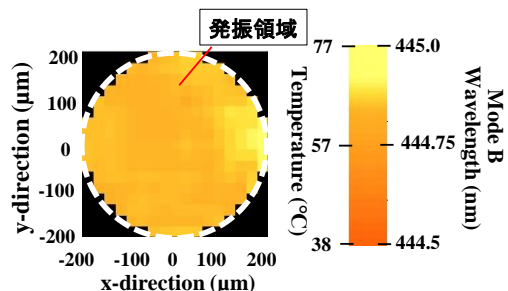


図3: 直径400 μm 共振器内部の2次元波長分布

 CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.6] Code-sharing Session of 3.10 & 3.14

[21a-A308-1~10] CS.6 Code-sharing Session of 3.10 & 3.14

Tomohiro Amemiya(Tokyo Tech), Menaka De Zoysa(Kyoto Univ.)

Thu. Sep 21, 2023 9:15 AM - 12:00 PM A308 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

[21a-A308-1] Modulation characteristics of microring modulators with self-heating

○Liucun Li¹, Toshihiko Baba¹ (1.Yokohama Nat'l Univ.)

9:15 AM - 9:30 AM

▲[21a-A308-2] Measurement of band structure in the synthetic frequency dimensions

for a silicon-based coupled two ring resonators

○Runming Zhang¹, Liucun Li², Mikiya Kamata², Toshihiko Baba², Tomoki Ozawa³, Yasutomo Ota⁴, Satoshi Iwamoto¹ (1.Univ. of Tokyo, 2.Yokohama Nat'l Univ., 3.Tohoku Univ., 4.Keio Univ.)

9:30 AM - 9:45 AM

[21a-A308-3] All optical switching operation of etched nanowire integrated III-V Si hybrid photonic crystals cavity

○Masato Takiguchi^{1,2}, Takuro Fujii^{1,3}, Naotomo Takemura^{1,2}, Hisashi Sumikura^{1,2}, Akihiko Shinya^{1,2}, Shinji Matsuo^{1,3}, Masaya Notomi^{1,2,4} (1.NTT NPC, 2.NTT BRL, 3.NTT DTL, 4.Tokyo Tech)

9:45 AM - 10:00 AM

[21a-A308-4] Realization of Second-Harmonic Generation on Silicon Metasurfaces

○(M2)Kotaro Ueda¹, Soki Hirayama¹, Won Jihee¹, Ryushi Fujimura², Yoshito Tanaka³, Tsutomu Shimura¹ (1.Institute of Industrial Science, Tokyo Univ., 2.Utsunomiya Univ., 3.Research Institute for Electronic Science, Hokkaido Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM

[21a-A308-5] The cavity formation by selectively loaded Ge₂Sb₂Te₅ film on photonic crystal waveguides

○Takahiro Uemura^{1,2}, Hisashi Chiba^{1,2}, Taiki Yoda^{1,2}, Yuto Moritake¹, Yusuke Tanaka², Eiichi Kuramochi^{2,3}, Masaaki Ono^{2,3}, Masaya Notomi^{1,2,3} (1.TokyoTech, 2.NTT BRL, 3.NTT NPC)

10:15 AM - 10:30 AM

△[21a-A308-6] Monolithic integration of InP/Si hybrid optical power monitor and MOS optical phase shifter

○Tomohiro Akazawa¹, Kei Sumita¹, Stephane Monfray², Frederic Boeuf², Kasidit Toprasertpong¹, Shinichi Takagi¹, Mitsuru Takenaka¹ (1.The Univ. of Tokyo, 2.STMicroelectronics)

10:45 AM - 11:00 AM

- [21a-A308-7] High Repetition FMCW Measurement Using by Hybrid Wavelength Tunable Laser Diode
○Shu Irie¹, Misugi Yamato¹, Iino Kohei¹, Kita Tomohiro¹ (1.Waseda Univ.)
11:00 AM - 11:15 AM
- [21a-A308-8] Structure optimization of coupled photonic crystal nanocavities (III)
○Takashi Asano¹, Ryota Mitsuhashi¹, Ryuta Nagae¹, Susumu Noda¹ (1.Kyoto Univ.)
11:15 AM - 11:30 AM
- [21a-A308-9] Study of fabrication error tolerance of high-Q photonic crystal nanocavities
○Eiichi Kuramochi^{1,2}, Akihiko Shinya^{1,2}, Masaya Notomi^{1,2} (1.NTT-BRL, 2.NTT-NPC)
11:30 AM - 11:45 AM
- [21a-A308-10] Endurance and Retention of FeFET-driven non-volatile hybrid MOS phase shifter
○Masahiro Fujita¹, Rui Tang¹, Hanzhi Tang¹, Kasidit Toprasertpong¹, Shinichi Takagi¹, Mitsuru Takenaka¹ (1.The Univ. of Tokyo)
11:45 AM - 12:00 PM

自己発熱があるときの Si マイクロリング変調器の変調特性

Modulation characteristics of microring modulators with self-heating

横国大院工, 李 鑑村, 馬場 俊彦

Yokohama Nat'l Univ., Liucun Li, Toshihiko Baba

E-mail: li-liucun-rc@ynu.jp

キャリアプラズマ効果で動作するSiマイクロリング変調器 (MRM) は, 広い変調帯域と小さいフットプリントのため, 次世代光インターコネクションにおいて重要な役割を果たすと考えられる。ただし, MRMはドーピングによる光吸収が起こるので, 大きな光入力で変調するときには大きな吸収熱が発生する。この熱光学効果と自由キャリア分散 (FCD) 効果の増強がMRMの実効屈折率に作用し, MRMの共振スペクトルが非対称形状に変化する¹⁾。それによって入力光波長に対して共振波長がシフトし, 変調の消光比 (ER)と変調応答などが変化する²⁾。本研究は, この効果がMRMの変調特性に及ぼす影響を調査した。

入射光パワーを変化させたときのMRMの共振スペクトルの変化を図1に示す。このときのMRMのQ値は3,700である。Siフォトニクスチップへの入力光パワーが-8 dBm (SSCの結合損を考慮するとさらに3 dB低い)を超えると, 透過スペクトルに変化が現れる。パワーを8 dBmまで高めると, 顕著な非対称スペクトルになった。

次に, 図2(a)に示す実験系を用いて, 自己発熱を起こすポンプ光と, 変調を行うプローブ光を別々の波長で入力した。ポンプ光とプローブ光の入力パワーはそれぞれ8 dBm, -3 dBmとした。また, ゼロバイアス条件で変調周波数は1 GHz, 電気信号パワーは10 dBmである。図2(b)に示したように, ポンプ光波長が共振波長に近づくと, プローブ光の変調が得られる波長がシフトし, 最大なERは10 dBに達した。また図1に対応する長波長側の急峻な変化もそのまま表れた。現在, 様々な条件で変調を行い, どのような現象や機能が起こり得るかをさらに調査している。

参考文献

1) L. Zhang et al., Phys. Rev., 87, 053805

(2013).

2) M. J. Shin et al., IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron., 22, 116 (2016).

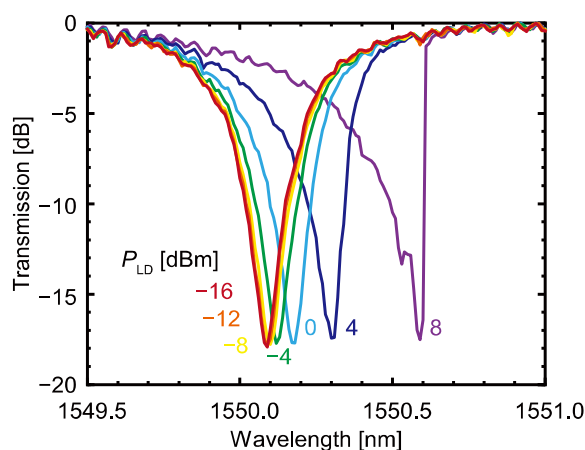


図1 自己発熱によるMRMの共振スペクトル変化。

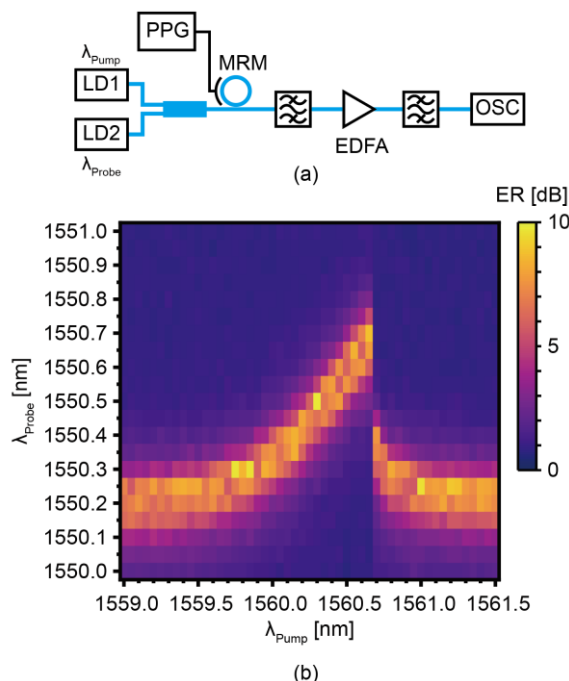


図2 変調実験. (a) ポンプ光とプローブ光を用いる実験系. (b) ポンプ光波長とプローブ光波長を変えたときの変調のERの変化。

シリコン2リング共振器結合系における周波数人工次元のバンド構造測定

Measurement of band structure in the synthetic frequency dimensions

for a silicon-based coupled two ring resonators

東大¹, 横国大², 東北大³, 慶応大学⁴◦張潤銘¹, 李 镠村², 鎌田幹也², 馬場俊彦², 小澤知己³, 太田泰友⁴, 岩本 敏¹Univ. of Tokyo¹, Yokohama Nat'l Univ., Tohoku Univ.³, Keio Univ.⁴◦Runming Zhang¹, Liucun Li², Mikiya Kamata², Toshihiko Baba², Tomoki Ozawa³, Yasutomo Ota⁴,
and Satoshi Iwamoto¹

E-mail: zrunm@iis.u-tokyo.ac.jp

In photonics, synthetic dimensions, in which one or more spatial dimensions are replaced with non-spatial degrees of freedom of light, are recently receiving attentions [1]. Topological chiral edge states in synthetic dimensions allow realization of an optical isolator without the use of magneto-optical materials [2,3]. Using a single silicon ring resonator, photonic dispersion in a synthetic dimension and its modification under synthetic gauge fields have been demonstrated [4]. To explore rich physics in the synthetic dimension and realize novel photonic devices, it is essential to extend the system from a single resonator to coupled resonators. In this study, as the first step, we fabricated a coupled two ring resonators by a silicon CMOS process and measured the band structures in a synthetic dimension.

Figure 1 (a) shows the schematic device configuration and a photograph of one of the fabricated devices. The devices are composed of two ring resonators coupled to each other via an MMI coupler, whose splitting ratio can be controlled by injecting a current into the coupler. The cavity length of each ring resonator is ~ 4.2 mm, corresponding to FSR of ~ 19 GHz. Each ring resonator is equipped with an optical modulator. We generated a lattice in the synthetic frequency dimension by applying an RF signal at the frequency of 18.66 GHz to each modulator and measured the band structure by time-resolved transmission measurements either at Port 1 or Port 2. One of the measured band structures at Port 2 is shown in Fig. 1(b). The results show features similar to the theoretical band structure calculated based on the model in [5] when the phase difference of two RF signals is π (Fig. 1(c)). The band structures measured at different conditions and the detailed analysis will be discussed in the presentation.

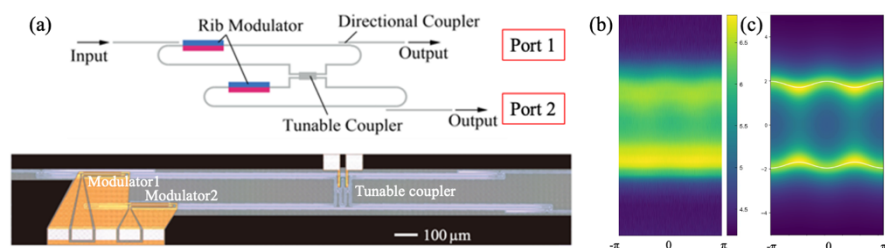


Fig1. (a) Schematic device configuration (top) and photograph of a fabricated device (bottom). (b) Measured band structure at Port 2. (c) Theoretical band structure calculated under the condition of the phase difference between two RF signals of π .

Acknowledgment: We thank Armandas Balčytis for his fruitful discussion and kind advice on measurement. This work is supported by JST CREST (JPMJCR19T1) and JST PRESTO (JPMJPR19L2).

Reference: [1] L. Q. Yuan, *et al.* *Optica* **5**, 1396 (2018). [2] T. Ozawa, *et al.*, *Phys. Rev. A* **93** 042827 (2016). [3] L. Q. Yuan, *et al.* *Opt. Lett.* **41**, 741 (2016). [4] A. Balčytis, *et al.* *Sci. Adv.* **8**, eabk0468 (2022). [5] A. Dutt, *et al.* *Science*, **367**, 59(2020).

エッチングナノワイヤ集積ハイブリッド III-V Si フォトニック結晶共振器の全光スイッチ動作

All optical switching operation of etched nanowire integrated III-V silicon hybrid photonic crystals cavity

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}, 武村尚友^{1,2}, 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}, N. Takemura^{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

Si プラットフォームに必要最小限の化合物半導体材料を集積することは、将来の光電融合素子や高性能な光デバイスを作製するのに重要である。我々はこれまで自己成長 InP ナノワイヤを Si フォトニック結晶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[1-5]。しかし、自己成長ナノワイヤを用いた場合、構造不均一性やトレンチ-ナノワイヤ間のエアギャップに光が集中するという課題があった。またレーザ素子を念頭にした場合は、ナノワイヤと基板間は接触面積が小さく熱伝導率が低く[4]、発振前にゲイン飽和を起こしてしまう。そこで、今回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精密に作製し、Si フォトニック結晶のトレンチに集積することで、エアギャップの小さい III-V ナノワイヤ-Si のハイブリッドフォトニック結晶共振器を作製した。エッチングでナノ構造を作製すれば、任意形状を作製でき、素子サイズにより非発光再結合レートを制御できるため高速な光スイッチへ応用できる。図 1(a)は実際に作製したナノワイヤ導入 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作製した。それを転写プリント法・ μ マニピュレータ・原子間力顕微鏡を用いて、Si フォトニック結晶の L3 共振器内に導入した。図 1(b)は実際のサンプルのエアギャップを加味した本構造のシミュレーション結果で、Q 値は 7600 程度で閉じ込め係数は 0.14 程度であった(図 1(b)(c))。また、作製した共振器は、 μ -PL 測定と透過測定から実験 Q 値は 2400 であることが分かった。probe 光(CW 光)を導入した状態で、fs レーザのパルス光をあてることで全光スイッチの実験を行い、スイッチング速度は 60ps と過去の我々のナノワイヤスイッチに比べて動作速度が高速化したことが確認できた(図 1(d))。本研究は JSPS 科研費 23H01888 の助成を受けたものである。

[1] M. Notomi, et.al., Opt. Mater. Express, 10, 2560 (2020),

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

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

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

[5] M. Takiguchi, et.al., OSA Continuum, 4, 1838 (2021)

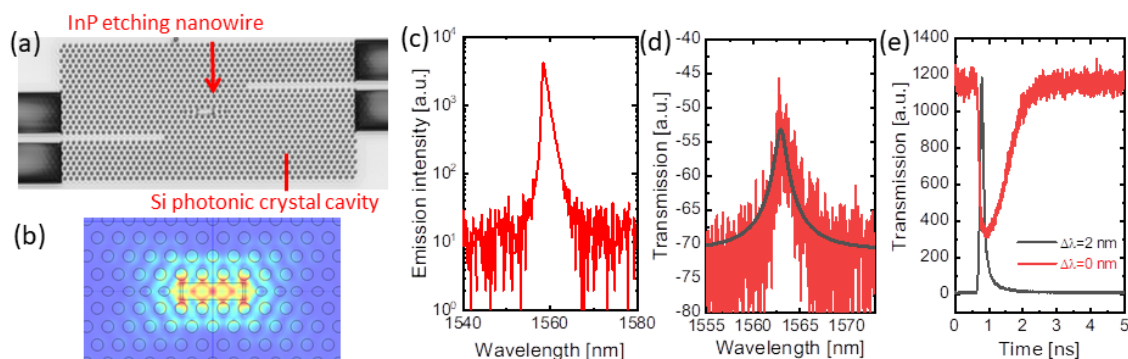


Fig. 1 (a) Optical microscope image of Si photonic crystal (PhC) cavity with etching nanowire (b) Electric field of a nanowire integrated in Si PhC. (c) Emission spectrum (d) Transmission spectrum (e) Switching operation.

シリコンメタサーフェスにおける第二高調波発生の実現

Realization of Second-Harmonic Generation on Silicon Metasurfaces

東大生研¹, 宇大工², 北大電子研³, [○](M2)上田 康太郎¹, 平山 颯紀¹, 元 志喜¹,
藤村 隆史², 田中 嘉人³, 志村 努¹

Institute of Industrial Science, The University of Tokyo¹, Utsunomiya University², Research Institute
for Electronic Science, Hokkaido University³, [○]Kotaro Ueda¹, Soki Hirayama¹, Won Jihee¹, Ryushi
Fujimura², Yoshito Tanaka³ and Tsutomu Shimura¹

E-mail: kouneko@iis.u-tokyo.ac.jp

情報化が進む現代において、発熱や消費電力の問題の解決策として光による情報処理が期待されている。中でもシリコンを用いて光集積回路を作るシリコンフォトニクスは、材料の利便性や加工技術、既存の電子回路との相性などの観点から非常に有望である。しかしながら単結晶シリコンは反転対称性を持つためバルクでは二次非線形光学効果を持たない。二次非線形光学効果は量子光学や情報通信などに欠かせないものであり、現状ではシリコンフォトニクスにおいてこれを利用する場合はシリコンとは別に非線形結晶を用意して組み合わせる必要がある。これでは、ウェハー上に集積回路を形成できるシリコンの最大のメリットを大きく損なってしまう。

そこで、本研究ではシリコンのみを用いて二次非線形光学効果を実現することを目指している。その第一歩として、シリコンでの第二高調波発生(SHG)の発生を目指す。バルクでは空間反転対称性を持つシリコンも表面では空間反転対称性は破れており、局所的に二次の非線形分極が励起される。これによって発生する SHG は表面 SHG と呼ばれている。しかし、表面 SHG そのものは非常に弱いため実用には程遠い。

その解決策としてメタサーフェスによって表面 SHG を制御・増強することを提案する。メタサーフェスとは、光の波長以下の大きさの構造体(メタアトム)を表面に配列したものである。メタサーフェスに光を入射すると、配列された各メタアトムの表面 SHG が発生する。各メタアトムの設計により、(1)表面 SHG の放射方向制御、(2)ミ共鳴による表面 SHG の増強 を行う。

本発表では、電磁場解析シミュレーションの結果について述べる。FEM および FDTD を用いて計算を行った結果、入射光の偏光が持つ対称性と異なる対称性の構造を持つ三角柱において、表面 SHG の放射を 1 方向に偏らせることができると明らかになった(Fig1)。また、表面 SHG の放射強度とミ共鳴が相関を持ち、ミ共鳴が起きるとき表面 SHG が増強されることが明らかになった(Fig2)。

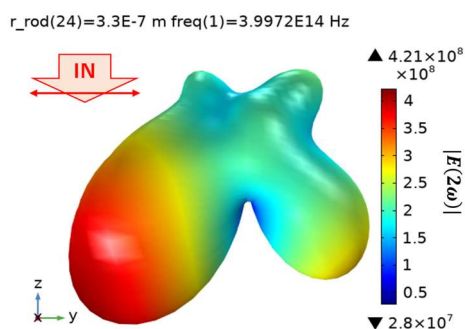


Fig1. Farfield での表面 SHG の強度と方向

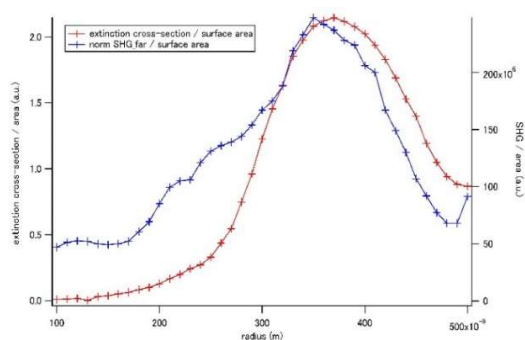


Fig2. 底面半径ごとのミ共鳴強度と SHG 強度

フォトニック結晶導波路上への $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ パターニングによる共振器形成

The cavity formation by selectively loaded $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ film on photonic crystal waveguides

東工大理¹, NTT物性研², NTT NPC³

○上村 高広^{1,2}, 千葉 永^{1,2}, 養田 大騎^{1,2}, 森竹 勇斗¹, 田中 祐輔², 倉持 栄一^{2,3}, 小野 真証^{2,3}, 納富 雅也^{1,2,3}

1. Tokyo Institute of Technology, 2. NTT BRL, 3. NTT NPC

○Takahiro Uemura^{1,2}, Hisashi Chiba^{1,2}, Taiki Yoda^{1,2}, Yuto Moritake¹, Yusuke Tanaka², Masaaki Ono^{2,3}, Eiichi kuramochi^{2,3}, Masaya Notomi^{1,2,3}

E-mail: uemura.t.ac@m.titech.ac.jp

産業界において広く使用される相変化材料である $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST) は、常温でアモルファス(a-)相と結晶(c-)相の2つの安定相を持つ。レーザーや電流による双方向の相転移が可能であるほか、両相で大きな複素屈折率コントラストを有する[1]。そのため、Si 細線やリング共振器、1次元フォトニック結晶共振器等へ数 μm スケールで装荷することによる変調手法が活発に研究されている[1-3]。我々はこれまでに、より小さな光閉じ込めが可能な2次元点欠陥型フォトニック結晶共振器[4]に対し数百nmスケールでのGST装荷に成功し、共振波長および共振Q値のチューニングについて報告した[5]。今回、元々共振器の存在しないフォトニック結晶導波路上へのGST装荷による共振器形成を達成したため、報告する。GSTによる共振器形成技術は、光集積回路における再構成可能なスイッチや不揮発性メモリへの応用が期待される。

図1(a)に、フォトニック結晶共振器形成の概略と、有限要素法によって計算した共振モードの電場分布を示す。線欠陥型フォトニック結晶導波路をベースとし、導波路の中央部分に縦 $400\sqrt{3}$ nm、横 200 nm、厚さ 30 nm の GST パターンを装荷している。GSTによる屈折率変調によってモードギャップがレッドシフトし、キャビティが形成される。有限要素法による固有周波数解析の結果、a相 ($n_a = 4.49 - 0.124i$) およびc相 ($n_c = 7.36 - 1.52i$) のGST装荷による共振モードの出現を確認した。

続いて、作製と測定の詳細について述べる。フォトニック結晶パターンを作製した後、リフトオフプロセスによって線欠陥導波路上にGSTパターンを形成した。図1(b)に示すAFM測定の結果から、GSTパターンが設計通りに作製されていることを確認した。図1(c)に透過率測定の結果を示す。ただし、GST未装荷、リフトオフ直後 (a-GST)、アニールによる結晶化後 (c-GST) の結果を掲載している。アニール条件は N_2 5 L/min 中で 280°C 、75分とした。a-GSTのスペクトルにおいて、バンドエッジ部分に共振ピークが確認された。また、バンドエッジをバックグラウンドとして消去した結果、良好な共振モードが得られていることを確認した (図(d))。モード端を基準としたときの共振波長は $+3.01$ nm であり、結合導波路も考慮した数値解析の結果 ($+1.62$ nm) よりも大きかったが、これはGSTの作製誤差およびモード端推定の誤差に由来すると考えられる。他方、共振Q値に関しては数値解析 ($Q = 682$) と同程度であった。また、c-GSTでは共振ピークが確認されなかったが、これは強い吸収により共振Q値が著しく低下したためであると考えられる。

【参考文献】[1] D. Tanaka et al, Optics express 20(9), 10283-10294 (2012) [2] M. Rude et al, Applied Physics Letters 103.14 141119 (2013) [3] J von Keitz et al, ACS Photonics 5.11 (2018) [4] Notomi et al, Optics express 12.8 1551-1651(2004) [5] 上村, 他 第66回応用物理学会春季学術講演会 19p-Z10-12 (2021) 【謝辞】本研究は、科学研究費補助金 (20H05641) の援助の下に行われた。

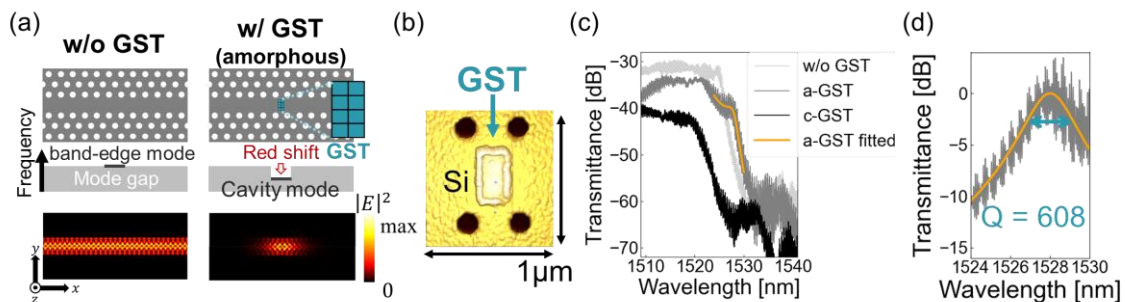


Fig.1 (a) The diagram for describing the mechanism of cavity formation by GST loading and the electric field distributions for the band-edge mode (left) and the resonant mode (right). The lattice constant a , slab thickness h , and radius of the air-holes are 400 nm, 200 nm, $a/4$, respectively. The resonant wavelengths of cavity modes are 1536.71 nm (left) and 1538.12 nm (right). (b) The result of AFM measurement near the GST patterns. (c) Creation and annihilation of the resonant mode by GST confirmed by transmission spectrum measurements. (d) The details of the spectrum and fitted curve with the GST-film in the amorphous state.

InP/Si ハイブリッド光パワーモニタと MOS 型光位相シフタの一体集積

Monolithic integration of InP/Si hybrid optical power monitor and MOS optical phase shifter

赤澤 智照¹, 隅田 圭¹, モンフレ ステファン², ブフ フレデリック², トーブラサートポンカシディット¹, 高木 信一¹, 竹中 充¹ (1. 東大院工, 2. ST マイクロエレクトロニクス)° T. Akazawa¹, K. Sumita¹, S. Monfray², F. Bocuf², K. Toprasertpong¹, S. Takagi¹, M. Takenaka¹

(1. The Univ. of Tokyo, 2. STMicroelectronics)

E-mail: akazawa@mosfet.t.u-tokyo.ac.jp

【背景・目的】 Si フォトニクス技術を用いてプログラマブル光回路 (PIC) を実装し、コンピューティングなどに応用する研究[1]が大きな注目を集めているが、所望の動作のために PIC を正しくプログラミングするには、多数集積された光位相シフタの光位相シフト量を電氣的に正確に制御することが必須である。しかし、実際には、素子作製誤差などに起因した位相誤差が存在するため、光位相シフタの校正が必要となる。多くの場合、回路の入出力関係から回路状態を推定して校正しているが、回路中の光強度を直接モニタすることが回路校正に有効である。しかし、これまで高感度かつ低損失な光パワーモニタは実証されていなかった[2]。そこで本研究では、近赤外光に対して透明な InP のトラップ準位を介した光吸収と、フォトトランジスタの増幅作用を用いることで、光損失を最小限に抑えながら、高感度な光パワーモニタを実現し、さらに、高性能な InP/Si MOS 型光位相シフタを用いた MZI と一体集積することで、光位相シフトに伴う MZI の光強度変化をモニタすることに成功したので報告する。

【素子作製】 エピタキシャル成長された 20 nm n-InP 層 ($N_D = 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) を含む InP 基板を Al_2O_3 を介して Si リブ導波路を含む SOI 基板と貼り合わせ、EB リソグラフィによって InP 領域を定義した後、PECVD で SiO_2 クラッド層を成膜した。最後に、電子線蒸着によって Ni/Au 電極を堆積した (Fig. 1)。

【実験結果】 波長 1550 nm の CW 光をグレーティングカップラを介して、長さ 10 μm のフォトトランジスタに入射したときの受光特性を Fig. 2a に示す。フォトトランジスタの増幅作用によって、-44 dBm の微弱な光に対しても明瞭な光電流が確認された。また、長さ 10 μm デバイスに対して、0.25 dB 以下の非常に小さな挿入損失を得ることに成功した (Fig. 2b)。InP/Si MOS 型光位相シフタとフォトトランジスタを 1×1 MZI 上に集積し、位相シフタで変調した光 (Fig. 3b) をフォトトランジスタでモニタすると、透過光強度に追従して、フォトトランジスタにおける光電流が増加したことから、フォトトランジスタが高感度かつ低損失な光パワーモニタとして有用であることが示された (Fig. 3c)。【謝辞】 本研究の一部は、JST-Mirai プログラム (JPMJMI20A1)、JST、CREST (JPMJCR2004)、JSPS 科研費 (JPM23H00172)、文部科学省 ARIM (課題番号 JPMXP1222UT1028) の支援を受けて行った。また、一部は NEDO 委託事業 (JPNP16007) の成果を含む。InP エピ基板を提供頂いた住友電工伝送デバイス研究所の八木英樹博士、伊藤友樹博士、森大樹博士に感謝する。【参考文献】 [1] W. Bogaerts *et al.*, *Nature* 586, 207 (2020). [2] T. Ochiai *et al.*, *Nat. Commun.* 13, 1 (2022).

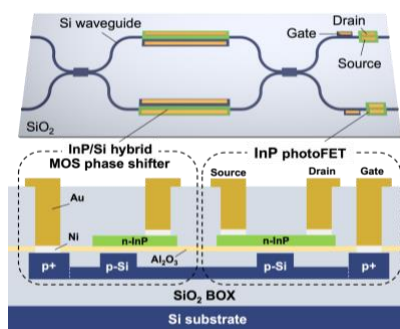


Fig. 1: A schematic of InP phototransistor integrated with InP/Si hybrid MOS optical phase shifter.

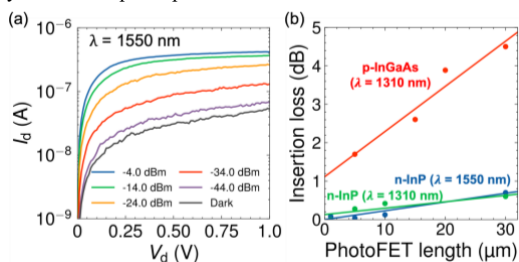


Fig. 2: (a) I_d - V_d characteristics of a 10- μm -long InP photoFET under 1550-nm-wavelength light injection. (b) Insertion loss of InP photoFET as a function of the device length.

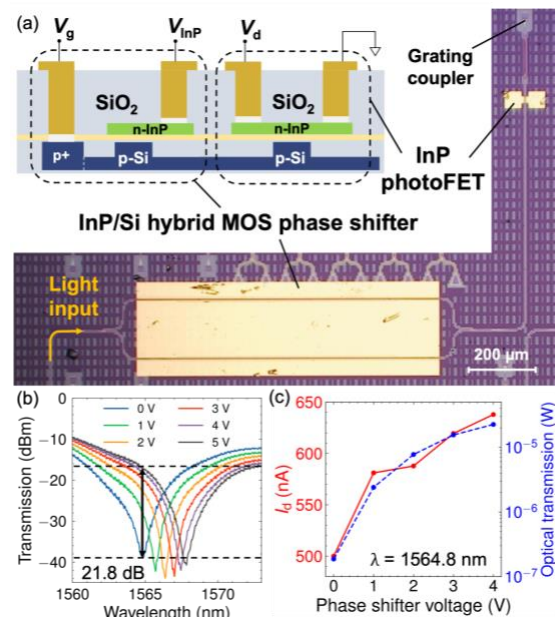


Fig. 3: (a) A Schematic and a microscopy image of a monolithically integrated InP photoFET and MZI with InP/Si hybrid MOS phase shifter. (b) Measured transmission spectra of the phase shifter at different V_g . (c) I_d and optical transmission at $V_d = 1$ V as a function of the voltage applied to the phase shifter.

シリコンフォトニクスハイブリッド波長可変レーザを用いた 高繰り返し FMCW 計測

High Repetition FMCW Measurement

Using by Hybrid Wavelength Tunable Laser Diode

早大理工院, °(M1)入江 周, 三杉 大和, 飯野 航平, 北 智洋

Waseda Univ., °Shu Irie, Yamato Misugi, Kohei Iino, Tomohiro Kita

E-mail: shui0326@akane.waseda.jp

1. 研究目的

近年、自動運転のための距離計測技術が盛んに研究されており、高精度で小型かつ低価格な LiDAR: Light detection and ranging が求められている。長距離の対象物を高精度に検出できる FMCW: Frequency modulated continuous wave 方式においては、レーザ光の周波数を時間的に変化させた周波数チャープ光が用いられる。本研究では、高速位相シフタを装荷したハイブリッド波長可変レーザ[1]によって、繰り返し周波数 1 MHz の周波数チャープ光が発生可能なことを数値解析によって示し、チャープ繰り返し周波数 25 kHz の高繰り返し FMCW 計測によって距離計測[2]の高精度化を実証した。

2. ハイブリッド波長可変レーザの構造

FMCW 計測の光源に用いるハイブリッド波長可変レーザの構造を Fig. 1 に示す。本構造は半導体光増幅器(SOA: Semiconductor Optical Amplifier)とシリコンフォトニクス外部共振器が接着されており、シリコンチップにはヒータが設置された2つのリング共振器と高速位相シフタ[3]、ループミラーが装荷されている。2つのリング共振器ではバーニア効果を利用して発振波長を選択する。また、高速位相シフタは、全長約 15 μm の非常に小さな通電加熱構造が形成されており、熱光学効果によって縦モードの位相をサブ μs オーダーで変化させ、発振周波数を連続的に変化させることが可能である。ここでハイブリッドレーザの縦モード間隔は 17.2 GHz であり、同程度の帯域幅を持つ周波数チャープ光を発生することができる。

3. シミュレーションと FMCW 計測

伝熱解析ソフトウェアを用いて、高速位相シフタに繰り返し周波数 1 MHz の鋸波状電力を印加したときの、最大電力と周波数変化量の関係を Fig. 2 に示す。40 mW の入力電力によって周波数は最大で約 12 GHz 変化することを確認した。次に、ハイブリッドレーザから出力した周波数チャープ光をコリメータから自由空間に出射し、約 0.5 m の距離に設置したターゲットの FMCW 距離計測を行い、測定距離の標準偏差を評価した。帯域幅が 4.4 GHz のときの繰り返し測定回数 n と標準偏差 σ の関係を Fig. 3. に示す。 σ は、繰り返し計測によって \sqrt{n} に反比例して減少し、最小で 0.47 cm が得られた。

4. まとめ

ハイブリッド波長可変レーザを用いた FMCW 計測において、繰り返し測定を行う事で計測距離の標

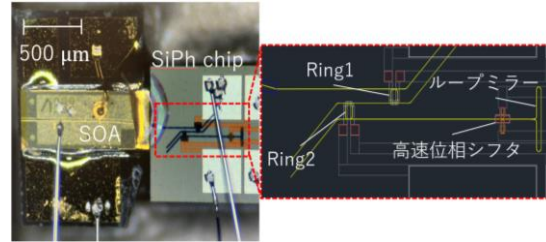


Fig.1. Structure of hybrid wavelength tunable laser diode with high-speed phase shifter.

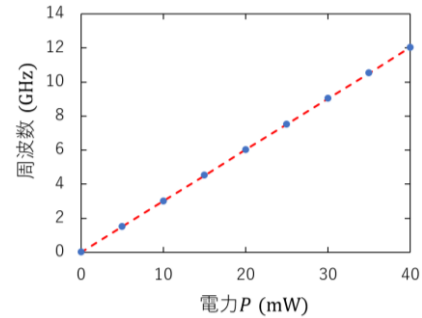


Fig.2. Frequency shift by applied power.

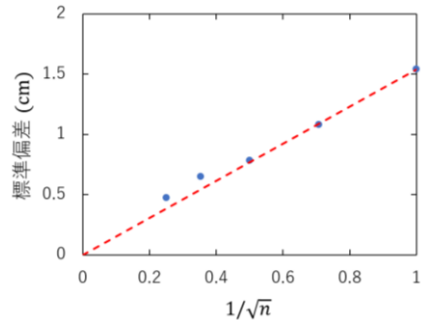


Fig.3. Relationship between σ and n .

準偏差 0.47 cm が得られた。測定回数をさらに増加させることで、より高精度な距離計測が期待される。

謝辞

本研究の一部は、総務省戦略的情報通信研究開発推進事業(SCOPE), NICT 委託研究 Beyond 5G 研究開発促進事業(#1301)及び科研費(23H01472)の助成のもとに実施された。

参考文献

- [1] Tomohiro Kita, et al., IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 22(6), p. 1500612 (2016).
- [2] 川名 理緒, 他., 信学技報, 121(377), OPE-2021-69, pp.103-106(2022).
- [3] M. Mendez-Astudillo, et al., Optics Express 27, pp.899-960(2019).

フォトニック結晶光ナノ共振器結合系の構造最適化 (III)

Structure optimization of coupled photonic crystal nanocavities (III)

京大院工 ○浅野卓、三橋凌太、永江隆太、野田進

Kyoto Univ. ○T. Asano, R. Mitsuhashi, R. Nagae, S. Noda

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

【序】我々はチップ上での自在な光転送の実現に向けて、導波路を介して結合した3共振器結合系(図(a))において、制御用光ナノ共振器Cの共振波長を電気的に変化させることで、共振器AB間での光転送を行うことを提案・実証している(図(b))¹⁾。さらに転送の高効率・高速化に向けて、結合用導波路の位置を共振器の横から共振器の同軸上に変更したうえで(図(c))、結合部周辺の空孔位置の調整を行うことで、実験的に、放射Q値を増大させつつ結合係数 μ を3倍程度(32Grad/s)まで増大させることに成功した²⁾。しかしながら光転送実験に関しては、高速化は実証できたものの、転送後の光子寿命が低下するという現象が生じていた(図(d))。今回、その原因を理論的に解明し、対策を検討したので報告する。**【結果】**図(a),(b)における共振器A~Cの領域に相当するモデルを3次元FDTD(時間領域差分法)で再現し、共振器Cへのキャリア注入に伴う吸収係数の増加と屈折率の低下を考慮した計算を行った。具体的には $0\sim 3\times 10^{19}\text{cm}^{-3}$ の範囲の複数のキャリア密度でFDTD計算を行い、共振器AのQ値とAC間の波長差を求めた。構造としては、従来構造/同軸構造、空孔位置調整あり/なしの4種類を検討した。結果を図(e)に示す。同図から、図(c),(d)に相当する同軸・調整ありの場合は、キャリアを十分($>0.5\times 10^{19}\text{cm}^{-3}$)注入した後の共振器AのQ値が40~50万程度と小さいことが分かる。また従来構造、同軸構造ともに結合定数が大きいほどQ値が小さいことも分かる。これまでは共振器AとCが非共鳴な状態では、Aから結合用導波路に漏れ出る光はC領域のモードギャップで反射されて戻るためキャリアによる損失は無視できると考えてきたが、この計算により光がキャリア注入領域にまでしみ込んで吸収を受ける効果が無視できない場合もあることが分かった。結合定数が大きいほど導波路に漏れ出る光の割合は多くなるので、反射率が同程度であってもQ値の低下が激しくなるものと考えられる。そこでキャリア注入領域の形状を調整するとともに、高い結合定数と放射Q値だけでなく、Cにキャリアを注入($2\times 10^{19}\text{cm}^{-3}$ を想定)した共振器AのQ値を高くすることも含めて、共振器Cの自動構造最適化を行った。結果を図(f)に示す。24Grad/s程度の結合定数を保ちながら、キャリア注入時にも190万程度と比較的高いQ値が実現できていることが分かる。放射Q値も800万以上と十分高い。詳細は当日報告する。**【文献】**[1] M. Nakadai, T. Asano, S. Noda, *Nat. Photon.* **16**, 113 (2021). [2] 三橋 他, 2022 春応物, 20a-A101-4. **【謝辞】**本研究の一部は科研費22H01988の支援を受けた。

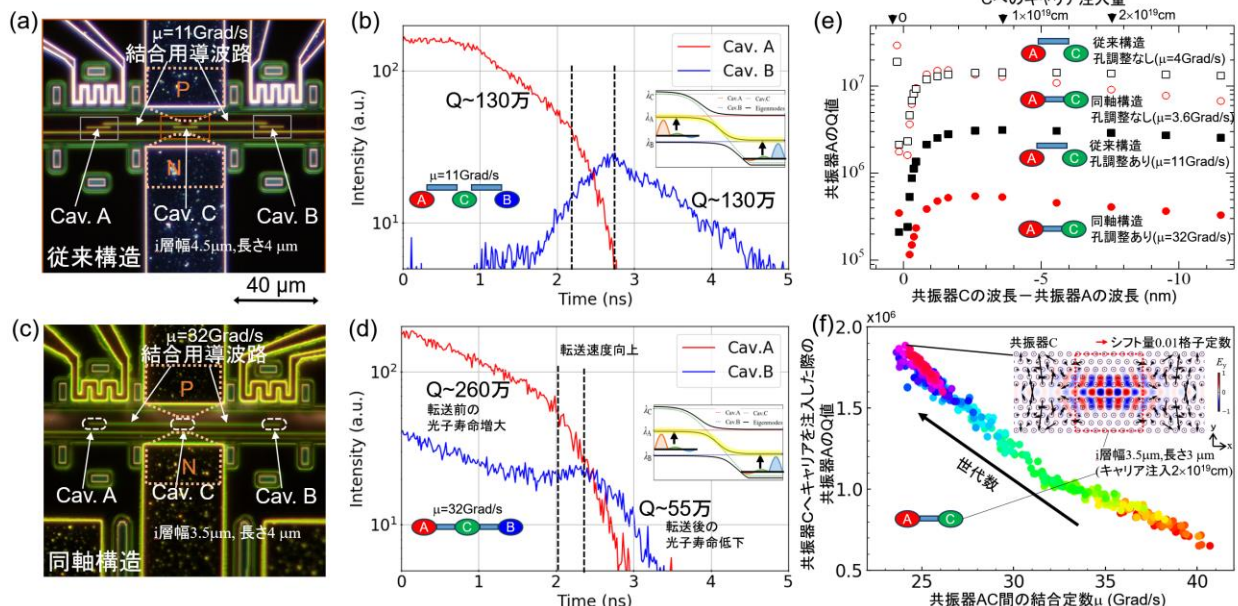


図: (a),(c)電気制御可能な3共振器結合系の顕微鏡写真。(a)は従来型、(c)は同軸型。(b),(d)それぞれの構造における光転送実験結果の一例。(e)共振器Cにキャリアを注入した際の、共振器AのQ値とAC間の波長差のFDTD計算結果。(f)キャリア注入時のQ値向上も考慮した構造最適化結果の一例。

高 Q 値フォトニック結晶ナノ共振器の加工揺らぎ耐性の実験検討

Study of fabrication error tolerance of high- Q photonic crystal nanocavities

NTT 物性基礎研¹, NTT ナノフォトニクスセンタ² ○倉持 栄一^{1,2}, 新家 昭彦^{1,2}, 納富 雅也^{1,2}

NTT Basic Research Labs.¹, NTT Nanophotonics Center²

○Eiichi Kuramochi^{1,2}, Akihiko Shinya^{1,2}, Masaya Notomi^{1,2}

E-mail: kuramochi.eiichi@ntt.com

フォトニック結晶(PhC)ナノ共振器の実験 Q 値は理論 Q 値と付加的な Q 値により決まるとされ、付加的な Q 値は 300 万程度までは主に結晶穴の加工揺らぎで決まると考えられている[1]。PhC ナノ共振器は位置シフトなどの変調を加える結晶穴数を増やすことでの高 Q 値化が進められてきた[1-5]が、理論 Q 値が高いほど付加的な Q 値の影響は大きくなる。共振器の設計に依存してナノ共振器の理論 Q 値が変わり、それを反映して実験 Q 値が変化することに関する報告は数多くあるが、付加的な実験 Q 値が共振器の設計に依存して大きく変わるかについてはまだ十分解明されていない。L3 ナノ共振器では 100~200 万の実験 Q 値が 300~500 万の理論 Q 値の設計で報告されている[2-4]。今回我々は、既に報告した設計 Q 値の高いいくつかの L3 ナノ共振器の設計[5]において、加工時の外乱由来による実験 Q 値劣化に設計に依存する明瞭な差が認められたので報告する。

電子線描画装置の制御により加工揺らぎを導入する手法には装置依存となる懸念があるため、今回は電子線レジスト転写プロセスの制御により描画装置依存とならないように意図的に加工揺らぎを制御し、L3 ナノ共振器の Q 値への影響を評価した。図 1 (a)に示す 10 パラメータの大規模変調 L3 共振器(Si, 厚さ 220nm) [5]の (A) $a=408\text{nm}$, $r=102\text{nm}$, $Q_{\text{th}}=2.2 \times 10^7$ (B) $a=392\text{nm}$, $r=83\text{nm}$, $Q_{\text{th}}=1.2 \times 10^8$ の 2 つの設計に対し揺らぎ導入無しの条件 1 では、(A)は 120 万、(B)は 130 万の実験 Q 値が得られた(図 1(b))。これに対し揺らぎ導入ありの条件 2 で加工を行ったところ、(A)は Q 値が半分程度に著しく低下したのに対し、(B)はなお 100 万程度の Q 値を示した。 Q 値の変動は加工揺らぎによるものと考えられ、(B)のように変動の少ない共振器は、加工揺らぎへの耐性が高いと考えられる。現在他の複数の異なる設計のナノ共振器について、加工揺らぎの Q 値への影響を同様に評価する検討を進めている。また加工揺らぎ耐性の高い共振器を得るための設計指針について調査検討を進めている。本研究は JST-CREST (JPMJCR15N4)の援助を受けた。

[1] T. Asano et al., Opt. Express **25**, 1769 (2017).

[2] E. Kuramochi et al., Nat. Photon. **8**, 474 (2014).

[3] Y. Lai et al., Appl. Phys. Lett. **104**, 241101 (2014).

[4] K. Maeno et al., Opt. Express **25**, 367 (2017).

[5] 倉持栄一他、第 69 回春季応用物理学会 24a-E301-8 (2022).

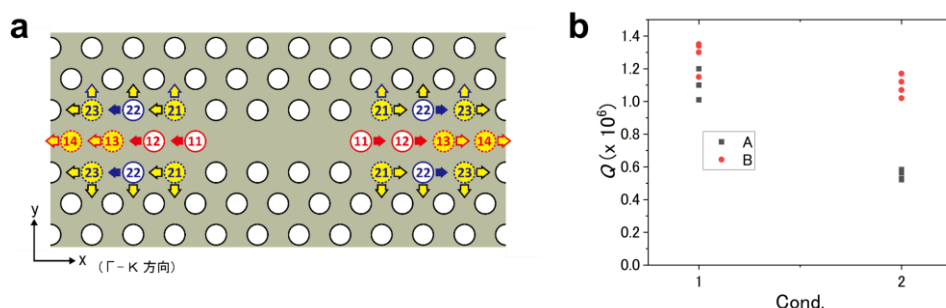


図 1 (a) L3 ナノ共振器(A,B)のシフト対象穴(11-23)とシフト方向(x,y)。シフト量(unit: a)は(A)

11x:0.315, 12x:0.214, 13x:0.062, 14x:0.051, 21x:-0.018, 21y:0.020, 22x:-0.055, 22y:0.011, 23x:-0.081,

23y:0.029, (B) 11x:0.332, 12x:0.212, 13x:0.0959, 14x:-0.0333, 21x:-0.0158, 21y:0.0037, 22x:-0.0661,

22y:-0.0308, 23x:-0.0836, 23y:0.0019. (b)レジストパタンの状態(1:加工揺らぎ導入無し、2: 加工揺らぎ導入有り)に依存した実験 Q 値の変化。

FeFET 駆動型不揮発性ハイブリッド MOS 位相シフタの Endurance・Retention 特性

Endurance and Retention of FeFET-driven non-volatile hybrid MOS phase shifter

○藤田将大, 唐睿, 湯涵智, トープラサートポン カシディット, 高木信一, 竹中充

(東大院工)

○Masahiro Fujita, Rui Tang, Hanzhi Tang, Kasidit Toprasertpong, Shinichi Takagi,

Mitsuru Takenaka (The University of Tokyo)

E-mail: fujita@mosfet.t.u-tokyo.ac.jp

【はじめに】半導体微細化に依らない革新的なコンピューティング技術として、シリコンフォトニクスを用いたプログラマブル光回路[1]が提案されており、将来的な高速化・低消費電力化のために不揮発性メモリ機能を持つ光位相シフタが求められている。

我々は、低消費電力・低損失・高速なIII-V/Siハイブリッド MOS 光位相シフタ[2]に、強誘電体 FET (FeFET) を組み合わせた不揮発性光位相シフタを提案している[3]。今回、不揮発性メモリとしての書き込み可能回数 (Endurance)、データ保持時間 (Retention) について評価を行ったので、報告する。

【実験手法】実験には、 $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ (HZO) をゲート絶縁膜とする Si FeFET とハイブリッド MOS 光位相シフタを使用した。データの書き込みは、FeFET を $V_d = V_s = 0$ V とした状態で、ゲートに ± 3 V, 100 μs のパルスを入力することで行った。Fig.1 のように FeFET のソース端子を MOS 光位相シフタに接続した。FeFET をソースフォロワ動作させることで、 $V_s = V_g - V_{th}$ のソース電圧[4]が MOS 位相シフタに印加される。HZO の分極状態によって閾値電圧 (V_{th}) が変化することを利用して、分極状態に応じた光位相シフトが得られる。 $V_d = 1.0$ V, $V_g = 0.9$ V, $V_{bias} = 0.75$ V とし、 $V_s + V_{bias}$ がハイブリッド MOS 位相シフタに印加されるように設定した。

書き換え可能回数の評価では、交互に $V_g = \pm 3$ V の書き込みパルスを印加し、書き込みサイクル数と位相シフト量の関係を測定した。データ保持時間については、データの書き込みを行ったからの時間経過 ($V_g = 0$ V で保持) に伴う位相シフト量の変化を測定した。

【実験結果】データ書き換え可能回数の実験結果を Fig. 2 に示す。 10^3 サイクル程度から 2 値の状態間の位相シフト差の減少が見られており、 10^5 サイクルで完全に消失していることが確認された。これは、書き込みサイクルの中でゲートスタックの HZO-SiO₂ 界面や SiO₂-Si 界面の劣化が発生し、分極が V_{th} を制御できなくなったからと考えられる[5]。

また、データ保持時間の実験結果を Fig. 3 に示す。HZO を用いた FeFET において一度書き込まれた V_{th} 状態の保持特性が優れているため[5]、位相シフト量の状態が長時間経過しても保持されることがわかる。本実験において 10^5 s までのデータ保持特性から外挿して、10 年 (3×10^8 s) 以上位相シフト量が保持されることが分かった。

【まとめ】FeFET 駆動型不揮発性ハイブリッド

MOS 光位相シフタのデータ書き換え可能回数は 10^5 サイクル程度であることを示した。また、10 年以上のデータ保持時間が可能であることが分かった。

【謝辞】本研究の一部はJST-Miraiプログラム(JPMJMI20A1), JST CREST (JPMJCR2004, JPMJCR20C3), JS PS 科 研 費 (JPM23H00172), 文部科学省ARIM (課題番号JPMXP1222UT1028) の支援を受けて行った。また、一部はNEDO委託事業 (JPNP16007) の成果を含む。

【参考文献】[1] W. Bogaerts et al, Nature 586, 207 (2020). [2] J. Han, et al, Nature Photon 11, 486–490 (2017). [3] R. Tang, et al, arXiv:2210.06979 (2022). [4] C. Matsui, et al, VLSI Symp, JFS2-8 (2021). [5] K. Toprasertpong, et al, Appl Phys A 128, 1114 (2022).

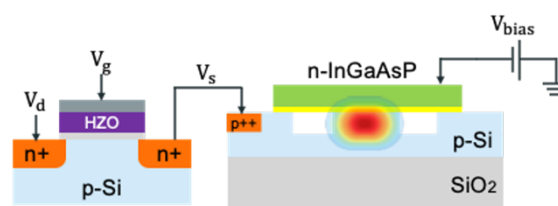


Fig. 1 FeFET-driven non-volatile hybrid MOS phase shifter.

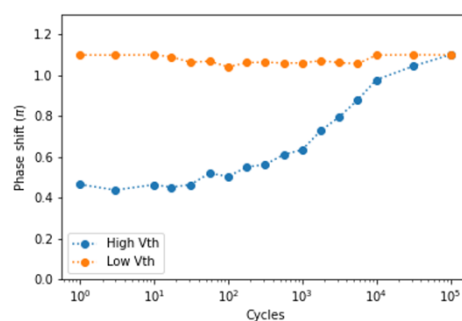


Fig. 2 Endurance characteristics.

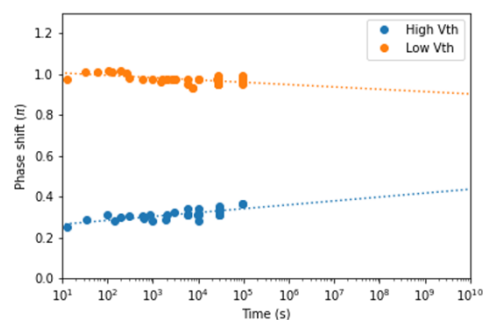


Fig. 3 Retention characteristics.

 CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.7] Code-sharing Session of 4.5 & 17

[20p-A602-1 ~ 16] CS.7 Code-sharing Session of 4.5 & 17

Ryo Kitaura(NIMS), Kazunari Matsuda(Kyoto Univ.), Yuhei Miyauchi(Kyoto Univ.), Yuichiro K. Kato(RIKEN)

Wed. Sep 20, 2023 1:00 PM - 6:45 PM A602 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

 No Mark : None of Above

- ▲[20p-A602-1] [JSAP-Optica Joint Symposia 2023 Invited Talk] Direct observation of electronic structures in atomically thin flakes by using micro-focused angle-resolved photoemission spectroscopy
 ○Masato Sakano¹ (1.The Univ. of Tokyo)
 1:00 PM - 1:30 PM
- ▲[20p-A602-2] Direct imaging of valley-polarized excitons in 2D semiconductors
 David R. Bacon¹, ○(D)Xing Zhu¹, Vivek Pareek¹, Kenji Watanabe², Takashi Taniguchi², Michael K. L. Man¹, Julien Madeo¹, Keshav M. Dani¹ (1.Femtosecond Spectroscopy Unit, OIST, 2.National Institute for Materials Science)
 1:30 PM - 1:45 PM
- ▲[20p-A602-3] Extreme UV photoemission electron microscopy imaging of moiré ferroelectricity in a twisted hBN heterostructure
 ○(P)Jacques Gabriel Hawecker¹, Prajakta Kokate¹, Risa Hocking², Kenji Watanabe³, Takashi Taniguchi³, Julien Madeo¹, Michael K. L. Man¹, Andrew J. Mannix², Keshav M. Dani¹ (1.OIST, 2.Stanford University, 3.NIMS)
 1:45 PM - 2:00 PM
- ▲[20p-A602-4] [JSAP-Optica Joint Symposia 2023 Invited Talk] Synthesis of wafer-scaled single-crystal 2D layered materials via chemical vapor deposition
 ○Ki Kang Kim¹ (1.Sungkyunkwan Univ.)
 2:15 PM - 2:45 PM
- ▲[20p-A602-5] Tracking Optical Properties During Atomic Substitution Process from MoSe₂ to Janus MoSeS
 ○Hiroo Suzuki¹, Masaaki Misawa², Yingzhe Wang¹, Kenji Tsuruta¹, Yasuhiko Hayashi¹ (1.Okayama Univ., 2.FIT)
 2:45 PM - 3:00 PM
- ▼[20p-A602-6] Strain Modulation to Moiré Superlattices in Transition Metal Dichalcogenide van der Waals Heterostructures
 ○(D)Hao Ou¹, Koshi Oi¹, Rei Usami¹, Takahiko Endo², Keisuke Shinokita³, Kazunari Matsuda³, Yasumitsu Miyata², Jiang Pu⁴, Taishi Takenobu¹ (1.Nagoya Univ., 2.Tokyo Metropolitan Univ., 3.Kyoto Univ., 4.Tokyo Inst. of Tech.)
 3:00 PM - 3:15 PM
- ▲[20p-A602-7] Pd Decoration at Vertical Edge of MoS₂ for Enhanced NO₂ Sensitivity: A DFT Study
 ○(DC)ADITYA KUSHWAHA¹, NEERAJ GOEL¹ (1.NEATJI SUBHAS UNIVERSITY OF TECHNOLOGY, DWARKA, SECTOR 3, DELHI)

3:15 PM - 3:30 PM

- ▲[20p-A602-8] [JSAP-Optica Joint Symposia 2023 Invited Talk] Upconversion electroluminescence in van der Waals tunnel diodes

○Goki Eda¹ (1.National Univ. of Singapore)

3:45 PM - 4:15 PM

- ▲[20p-A602-9] Elucidating Upconversion Photoluminescence Mechanisms in Air-Suspended Single-Walled Carbon Nanotubes

○Daichi Kozawa^{1,2,3}, Yuichiro K. Kato^{1,2} (1.RAP, RIKEN, 2.CPR, RIKEN, 3.MANA, NIMS)

4:15 PM - 4:30 PM

- ▲[20p-A602-10] Determination of in- and out-of-plane complex refractive index spectra of single-chirality carbon nanotube membranes

○Hengkai Wu¹, Taishi Nishihara¹, Akira Takakura¹, Kazunari Matsuda¹, Takeshi Tanaka², Hiromichi Kataura², Yuhei Miyauchi¹ (1.Kyoto Univ. IAE, 2.AIST)

4:30 PM - 4:45 PM

- ▲[20p-A602-11] Changing from diffusive to superdiffusive transport in carbon nanotube networks via nematic order control

○(PC)Filchito Bagsican^{1,2}, Michael Wais^{3,4}, Natsumi Komatsu^{5,6}, Weilu Gao⁷, Kazunori Serita¹, Hironaru Murakami¹, Karsten Held⁴, Iwao Kawayama^{8,1}, Junichiro Kono^{5,1,3}, Marco Battiato³, Masayoshi Tonouchi¹ (1.Osaka Univ., 2.FSU, OIST, 3.NTU, 4.TU Wien, 5.Rice Univ., 6.UC Berkeley, 7.Univ. of Utah, 8.Kyoto Univ.)

4:45 PM - 5:00 PM

- ▼[20p-A602-12] Plasmonic rectification effect in an asymmetric periodically gated graphene field effect transistor for THz detection

○Chao Tang^{1,2}, Hironobu Seki^{1,3}, Koichi Tamura^{1,3}, Shinnosuke Uchigasaki^{1,3}, Hirokazu Fukidome¹, Yuma Takida⁴, Hiroaki Minamide⁴, Akira Satou¹, Taiichi Otsuji¹ (1.RIEC, Tohoku Univ., 2.FRIS, Tohoku Univ., 3.School of Eng. Tohoku Univ., 4.RAP, RIKEN)

5:00 PM - 5:15 PM

- ▲[20p-A602-13] [JSAP-Optica Joint Symposia 2023 Invited Talk] Moiré excitonic states in a twisted WSe₂/MoSe₂ heterobilayer

○Keisuke Shinokita¹ (1.IAE, Kyoto Univ.)

5:30 PM - 6:00 PM

- ▲[20p-A602-14] Remote charge modulation effect of monolayer MoS₂ using periodically polarization-inverted structure and hBN spacer layer

Rong Kaippeng¹, Ryosuke Noro², Hayato Nishigaki², MIngda Ding², Yao Yao², Taiki Inoue², Ryuji Katayama², Yoshihiro Kobayashi², Kazunari Matsuda³, ○Shinichiro Mouri¹ (1.Ritsumeikan Univ., 2.Osaka Univ., 3.Kyoto Univ.)

6:00 PM - 6:15 PM

- ▼[20p-A602-15] Observation of quantum coherence of a single moiré exciton in nano-fabricated twisted MoSe₂/WSe₂ heterobilayers

○(D)Wang Haonan¹, Heejun Kim¹, Duanfei Dong¹, Keisuke Shinokita¹, Kenji Watanabe², Takashi Taniguchi³, Kazunari Matsuda¹ (1.Institute of Advanced Energy, Kyoto Univ., 2.Research Center for Electronic and Optical Materials, NIMS, 3.Research

Center for Materials Nanoarchitectonics, NIMS)

6:15 PM - 6:30 PM

▲[20p-A602-16] Chemically-tailored semiconductor moiré superlattices

○Wenjin Zhang¹, Zheng Liu², Hiroshi Nakajo^{3,4}, Soma Aoki³, Haonan Wan⁵, Yanlin Wang⁵, Yanlin Gao⁶, Mina Maruyama⁶, Takuto Kawakami⁷, Yasuyuki Makino¹, Masahiko Kaneda¹, Tongmin Chen⁸, Kohei Aso⁸, Tomoya Ogawa^{6,1}, Takahiko Endo¹, Yusuke Nakanishi¹, Kenji Watanabe⁹, Takashi Taniguchi⁹, Yoshifumi Oshima⁸, Yukiko Yamada-Takamura⁸, Mikito Koshino⁷, Susumu Okada⁶, Kazunari Matsuda⁵, Toshiaki Kato³, Yasumitsu Miyata¹ (1.Tokyo Metropolitan Uni., 2.AIST, 3.Tohoku Uni, 4.KOKUSAI ELECTRIC, 5.Kyoto Uni, 6.Uni. of Tsukuba, 7.Osaka Uni., 8.JAIST, 9.NIMS)

6:30 PM - 6:45 PM

Direct observation of electronic structures in atomically thin flakes by using micro-focused angle-resolved photoemission spectroscopy

QPEC and Dept. of Appl. Phys, The Univ. of Tokyo, Masato Sakano

E-mail: Sakano@ap.t.u-tokyo.ac.jp

The physical properties of atomically-thin, two-dimensional (2D) materials drastically change as the number of layers decreases towards the monolayer limit. The quantization of band dispersions along the stacking direction, as well as the reduction of symmetry compared to the infinite bulk crystal, can significantly modify the electronic structures of 2D materials, resulting in peculiar physical phenomena.

WTe₂, the material we focused on in our study, is a representative example. Bulk WTe₂ is a charge-compensated polar semimetal [1] predicted to be an inversion-symmetry-broken type-II Weyl semimetal [2]. In contrast, mono- and bi-layer WTe₂ are known as insulators with small band gaps [3-5]. In terms of structural symmetry, although monolayer WTe₂ is centrosymmetric, the stacking order of layers breaks the inversion symmetry in few-layer WTe₂, leading to unique phenomena related to the Berry-curvature dipole [4-8]. The aforementioned studies on thin-flake WTe₂ have primarily proceeded by comparing the transport properties of micro-devices with band calculations. Due to the limited size (typically ~0.01 mm) and volume of the samples, as well as the difficulty in handling them, many of the physical property measurements established in bulk systems are not applicable. Nevertheless, the precise investigation of the electronic structure is extremely important, especially considering that the properties related to Berry-curvature are determined by the electronic band dispersions in reciprocal space.

In our study, we used micro-focused laser angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) in combination with a 2D materials manufacturing system (2DMMS) [9], which can freely stack atomic layers using image recognition, machine learning, and robotic assembly. We developed an efficient procedure for investigating the band dispersions of atomically thin micro-flakes[10]. We prepared 2D WTe₂ flake samples for ARPES by using graphite/hBN as a substrate and encapsulating them with graphene. We successfully observed the thickness-dependent band structures of these atomically thin WTe₂ flakes. This clearly revealed an insulator–semimetal transition occurring between the 2- and 3-layer states, as well as a striking even–odd effect in the layer-number dependence of the spin-band splitting [11].

The sample preparation procedure we have developed is adaptable to van der Waals heterostructures with complex structures. In the latter part of the presentation, I will introduce recent studies where we have observed the electronic structures in twisted materials with complex structures.

- [1] M. N. Ali, *et al.*, *Nature* **514**, 205, (2014).
- [2] A. A. Soluyanov, *et al.*, *Nature* **527**, 495 (2015).
- [3] Z. Fei, *et al.*, *Nat. Phys.* **13**, 677 (2017).
- [4] Z. Fei, *et al.*, *Nature* **560**, 336 (2018).
- [5] I. Cucchi, *et al.*, *Nano Lett.* **19**, 554 (2019).
- [6] K. Kang, *et al.*, *Nat. Mater.* **18**, 324 (2019).
- [7] H. Wang and X. Qian, *npj Comput. Mater.* **5**, 119 (2019).
- [8] J. Xiao, *et al.*, *Nat. Phys.* **16**, 1028 (2020).
- [9] S. Masubuchi, *et al.*, *Nat. COmmun.* **9**, 1413 (2018).
- [10] S. Masubuchi*, M. Sakano*, Y. Tanaka* *et al.*, *Sci. Rep.* **12**, 10936 (2022).
- [11] M. Sakano*, Y. Tanaka*, S. Masubuchi* *et al.*, *Phys. Rev. Res.* **4**, 023247 (2022).
(* equally contributed)

Direct imaging of valley-polarized excitons in 2D semiconductors

David R. Bacon^{1†}, Xing Zhu^{1†}, Vivek Pareek^{1†}, Kenji Watanabe², Takashi Taniguchi², Michael K. L. Man¹, Julien Madéo¹, and Keshav M. Dani^{*1}

¹ Femtosecond Spectroscopy Unit, Okinawa Institute of Science and Technology Graduate University, Onna, Okinawa, Japan 904-0495

² National Institute for Materials Science, 1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki, Japan 305-0044

*E-mail: kmdani@oist.jp

† These authors contributed equally to this work.

1. Introduction

The monolayer transition-metal dichalcogenides (TMDCs), lacking inversion symmetry, allow the manipulation of excitonic states with valley degree of freedom through circularly polarized light [1-3]. However, with the complex landscape of exciton species in TMDCs, such as spin- or momentum- forbidden dark excitons, the valley depolarization mechanisms, which are of great importance for valleytronic applications, still lack clear understanding. Such measurements require direct access to the momentum and energy coordinate of constituent electrons and holes, but few experimental techniques provide such information. Meanwhile, time- and angle- resolved photoemission spectroscopy (TR-ARPES) has become a powerful tool to study excitons of 2D semiconductors in energy-momentum space [4-7]. In this talk, we focus on our momentum-resolved study on the valley-polarized excitons in monolayer WS₂ using TR-ARPES.

2. Experiments

We perform experiments on an exfoliated monolayer WS₂ stacked on an hBN buffer layer and a Si substrate, as plotted in Fig 1(a). The experimental setup, similar to that employed in our previous studies [4-6], consists of a home-built table-top beamline used to generate a 21.7eV XUV probe to photoemit the electrons from the sample. The electrons are further analyzed by a momentum microscope to map the 3D band-structure of the material (E , k_x , k_y).

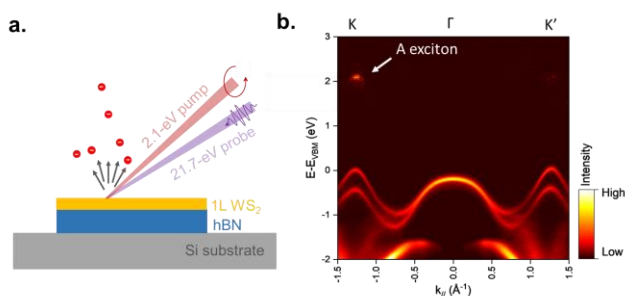


Figure 1. (a) Experimental schematic of the sample geometry with circularly polarized optical pump and XUV probe. (b) Energy-momentum cut from K to Γ , and to K' . The plot is taken at 0ps upon the photoexcitation.

To create valley-polarized excitons, a circularly polarized pump pulse resonant with the WS₂ A exciton (2.1eV) is used to excite the sample. A-excitons are initially selec-

tively photoexcited in the K valley, as shown in Figure 1(b). The following ultrafast depopulation and depolarization of bright excitons are further tracked in these time-resolved measurements.

3. Conclusions

Valley-polarized excitons in monolayer WS₂ are imaged in momentum and energy space using TR-ARPES. This study reveals the dynamics of the depolarization and the interplay between bright and dark excitons.

Acknowledgements

This work was supported in part by JSPS Kakenhi grant number 21H01020. Funding was also provided in part by the Femtosecond Spectroscopy Unit of the Okinawa Institute of Science and Technology Graduate University. We thank the OIST engineering support section for their support.

References

- [1] W. Yao, D. Xiao and Q. Niu, Phys. Rev. B Condens. Matter **77** (2008) 235406.
- [2] D. Xiao, G.-B. Liu, W. Feng, X. Xu and W. Yao, Phys. Rev. Lett. **108** (2012) 196802.
- [3] S. A. Vitale, D. Nezich, J. O. Varghese, P. Kim, N. Gedik, P. Jarillo-Herrero, D. Xiao and M. Rothschild, Small. **14** (2018) e1801483.
- [4] J. Madéo, M. K. L. Man, C. Sahoo, M. Campbell, V. Pareek, E. L. Wong, A. Al-Mahboob, N. S. Chan, A. Karmakar, B. M. K. Mariserla, X. Li, T. F. Heinz, T. Cao and K. M. Dani, Science **370** (2020) 1199.
- [5] M. K. L. Man, J. Madéo, C. Sahoo, K. Xie, M. Campbell, V. Pareek, A. Karmakar, E. L. Wong, A. Al-Mahboob, N. S. Chan, D. R. Bacon, X. Zhu, M. M. M. Abdelrasoul, X. Li, T. F. Heinz, F. H. da Jornada, T. Cao and K. M. Dani, Science Advances **7** (2021) eabg0192.
- [6] O. Kami, E. Barré, V. Pareek, J. D. Georganas, M. K. L. Man, C. Sahoo, D. R. Bacon, X. Zhu, H. B. Ribeiro, A. L. O'Beirne, J. Hu, A. Al-Mahboob, M. M. M. Abdelrasoul, N. S. Chan, A. Karmakar, A. J. Winchester, B. Kim, K. Watanabe, T. Taniguchi, K. Barmak, J. Madéo, F. H. da Jornada, T. F. Heinz and K. M. Dani, Nature **603** (2022) 247.
- [7] D. Schmitt, J. P. Bange, W. Bennecke, A. AlMutairi, G. Meneghini, K. Watanabe, T. Taniguchi, D. Steil, D. R. Luke, R. T. Weitz, S. Steil, G. S. M. Jansen, S. Brem, E. Malic, S. Hofmann, M. Reutzler and S. Mathias, Nature **608** (2022) 499.

Extreme UV photoemission electron microscopy imaging of moiré ferroelectricity in a twisted hBN heterostructure

Jacques Hawecker.¹, Prajakta Kokate.¹, Risa Hocking², Kenji Watanabe³, Takashi Taniguchi³, Julien Madéo¹, Michael K. L. Man¹, Andrew J. Mannix², Keshav M. Dani¹

¹ Femtosecond Spectroscopy Unit, Okinawa Institute of Science and Technology Graduate University, Onna-son; Okinawa, 904-0495 Japan

²Department of Materials Science and Engineering, Stanford University, Stanford, CA 94305, USA.

³ Research Center for Functional Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba, Japan

E-mail: Jacques.Hawecker@oist.jp

1. Introduction

Photoemission electron microscopy (PEEM) is a powerful technique allowing to map real space electronic distribution at different energies, providing high resolution imaging and spectroscopic information of a sample's surface [1,2]. However, typical table-top light source coupled with this technique do not allow for: 1) Extreme UV (XUV) energies to access larger Brillouin zones, all the valence bands and shallow core-levels (thus providing electronics and chemical information), 2) brightness required for nanoscale imaging and 3) time resolution to capture ultrafast dynamics. Recently, by bringing together Angle Resolved Photoemission (ARPES) and our ultrafast table-top based XUV source, we built a novel instrumentation capable of capturing the bandstructure of the material under optical excitation. This already provided important breakthrough in the field by providing momentum resolved visualizations of dark Xtons [3], excitonic wavefunctions in monolayer transition metal dichalcogenide [4] and in heterostructures [5]. However, to demonstrate nanometer-scale resolution XUV-PEEM imaging, one must overcome the large photon flux per area requirement and consequently space or sample charge effect. In this work, using another iteration of our light source coupled to our PEEM, we show imaging capability of resolving 2D moiré ferroelectric domain from a twisted hexagonal Boron Nitride (hBN).

2. Experimental setup & twisted hBN

Our XUV beamline is based on a tabletop Yb doped fiber amplifier laser system radiating ultrafast pulses of 1030nm operated at 1MHz. We generate the second harmonic (515nm) by using a LBO non critically phase matched crystal. The XUV (21.7eV) pulses are generated by high harmonic generation from our second harmonic focused in a Kr gas jet, similarly to our previous work [3]. To tightly focus the XUV beam on the sample, we use a synchrotron grade ellipsoidal mirror yielding a beam of $\sim 40 \times 10 \mu\text{m}$. This beam is spectrally filtered by a combination of thin Al and Sn filters and then coupled into our ELMITEC SPELEEM.

The sample used to illustrate our beamline capabilities is a twisted hBN heterostructure. hBN is an important building block for 2D heterostructures due to its insulator properties, low levels of charge disorder, or its large flat

terraces. It has been shown recently that a twisted hBN/hBN interface can be engineered with out-of-plane ferroelectric polarization by breaking inversion symmetry (i.e., with AB stacking, twisted 60° from bulk AA' order). Adding a small twist between the layers creates a moiré pattern, each moiré unit cell has one up and one down domain [6–8]. In this work, we fabricate a twisted hBN heterostructure that shows ferroelectric domains. We investigate this heterostructure with our state-of-the-art PEEM coupled to a tightly focused XUV beam in combination of other light sources to do time resolved measurement.

We have succeeded in accurately imaging the ferroelectric domains, in real space (see Figure 1) using our home built MHz XUV light source. Furthermore, from photoelectron spectroscopy (PES), we identified the band alignment within the ferroelectric domains. Finally, we captured the full Brillouin zone of our hBN structure using XUV-ARPES.

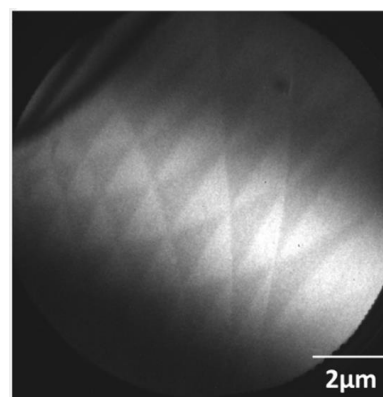


Figure 1 XUV PEEM imaging of the gamma valley valence band top (integration of 1eV) from our twisted hBN heterostructure.

Acknowledgements

We would like to express sincere thanks to all the contributors to the symposia for their cooperation.

References

- [1] M. K. L. Man et al., *Nature Nanotech* **12**, 1 (2017).
- [2] T. A. S. Doherty et al., *Nature* **580**, 7803 (2020).
- [3] J. Madéo et al., *Science* **370**, 1199 (2020).
- [4] M. K. L. Man et al., *Sci. Adv.* **7**, eabg0192 (2021).
- [5] O. Karni et al., *Nature* **603**, 247 (2022).
- [6] C. R. Woods, et al., *Nat Commun* **12**, 1 (2021).
- [7] M. Vizner Stern et al., *Science* **372**, 1462 (2021).
- [8] K. Yasuda et al., *Science* **372**, 1458 (2021).

Synthesis of wafer-scaled single-crystal 2D layered materials via chemical vapor deposition

Ki Kang Kim, Department of Energy Science, Sungkyunkwan University

E-mail: kikangkim@skku.edu

Two-dimensional (2D) materials including graphene, hexagonal boron nitride, and transition metal dichalcogenide have been paid attentions due to unusual intrinsic physical and chemical properties such as high exciton binding energy and large magnetic resistance. Such unusual properties allow unprecedented applications. To realize the intrinsic material properties and industrial applications, wafer-scaled single-crystal 2D films are highly required. Here, I present the recent progress of single-crystal growth for 2D van der Waals materials in a wafer scale via the self-collimation on liquid substrate and the epitaxial growth on self- atomic sawtooth surface. The detailed growth mechanism is discussed accordingly.

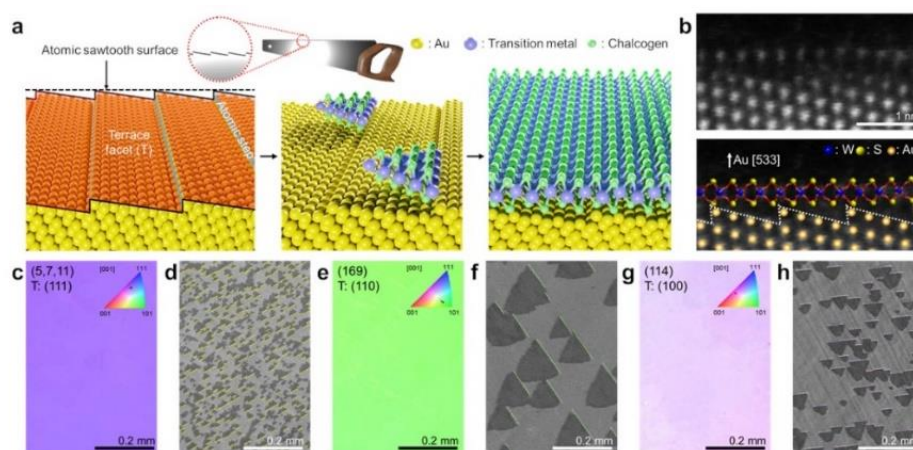


Fig 1. Growth of single-crystal WS₂ on atomic sawtooth Au surface. a) Schematic illustration of WS₂ film grown via an atomic sawtooth Au surface. b) Cross-sectional ADF-STEM image and the corresponding ball-and-stick model of as-grown WS₂ on an atomic sawtooth Au (533) surface. c,e,g) EBSD IPF maps and d,f,h) SEM images of coherently aligned WS₂ grains on Au (5,7,11), (169), and (114) with respective (111), (110), and (100) terrace facets.

Tracking Optical Properties During Atomic Substitution Process from MoSe₂ to Janus MoSeS

Hiroo Suzuki¹, Masaaki Misawa², Yingzhe Wang¹, Kenji Tsuruta¹, Yasuhiko Hayashi¹

¹ Okayama University, ² Fukuoka Institute of Technology
E-mail: hiroo.suzuki@okayama-u.ac.jp

1. Introduction

Janus transition metal dichloride (TMDC) is a TMDC with two different chalcogenide elements on the upper and lower surfaces. This special structure is reported to break the out-of-plane symmetry of the monolayer TMDC and produce out-of-plane polarization. This is expected to lead to the development of new electronic properties, such as Rashba spin splitting and piezoelectricity. There have been several reports on the synthesis of Janus TMDCs, and in recent years, the use of chalcogen spices containing H₂ plasma for atomic substitution on the surface of TMDC has attracted attention since Janus TMDCs can be generated at room temperature [1,2]. However, the generation process of Janus TMDCs with this method has not been well understood. In addition, the physical properties in the intermediate state between TMDC and Janus TMDC have also not been clarified, although the control of the intermediate state is important for tuning the physical properties of Janus TMDCs. Thus, elucidating the intermediate partially substituted Janus (PSJ) state between MoSe₂ and Janus MoSeS state is essential for understanding the synthesis dynamics and tuning the electrical properties of TMDCs.

2. Results

In this study, Janus MoSeS was produced using the S-containing H₂ plasma (H₂/S-plasma) with surface atomic substitution of monolayer MoSe₂. As such, the repeated power-controlled plasma treatment enabled the investigation of the intermediated PSJ state between MoSe₂ and Janus MoSeS. Moreover, the gradual atomic transition from MoSe₂ to Janus MoSeS was observed using X-ray photoelectron spectroscopy. The scanning transmission microscopy observation successfully revealed the PSJ structure at the atomic scale. Notably, we discovered the newly emerged Raman mode (peak X) specific to the PSJ structure during H₂/S plasma treatment (Fig. 1), which was reproducible with density functional theory (DFT) calculations. The photoluminescence (PL) presented the bandgap energy modulation with the S substitution ratio, which was consistent with the DFT calculations. Furthermore, we detected anomalous transition discontinuities of PL spectra in the early atomic-substitution stage, which could not be fully explained by the DFT calculations. We then proposed the possible model of the discontinuous PL transition, focusing on the competition between the domain size of Janus MoSeS formed in the PSJ structure and the exciton Bohr radius [3].

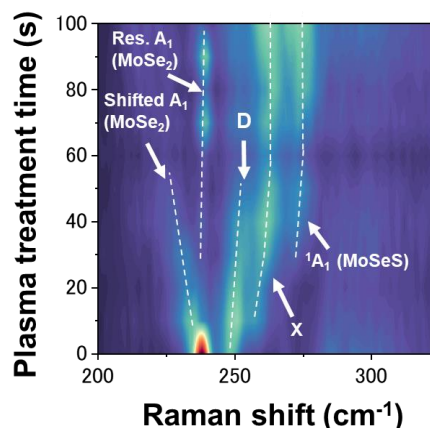


Figure 1: Mapping of Raman spectra with H₂/S-plasma treatment time.

3. Conclusions

The elucidation of the intermediate PSJ state between MoSe₂ and Janus MoSeS provides a deep understanding of the atomic substitution process during the synthesis of Janus TMDCs. The Raman peaks appearing in the PSJ state will help to characterize the degree of atomic substitution during synthesis. In addition, the control of this PSJ state will be significantly beneficial for tuning the properties of the Janus TMDC, such as its band gap, piezoelectricity, and spin splitting. Furthermore, the tunability of these properties will significantly contribute to realizing high-performance electronic devices based on Janus TMDCs. Further investigation of the electronic state of PSJ in relation to the possible effects such as the competition between the domain size of Janus MoSeS and the exciton Bohr radius will be essential for achieving a complete understanding of the phenomena emergent in the PSJ state.

Acknowledgements

We would like to thank Dr. C. Nakano (Okayama Univ.) for helping with XPS data acquisition and analysis, Ms. Y. Liu for engaging in experimental data acquisition, and the Foundation for the Promotion of Material Science and Technology of Japan (MST) for contract analysis.

References

- [1] D. Trivedi *et al.*, *Adv. Mater.* **32**, 2006320 (2020).
- [2] Y. Guo *et al.*, *PNAS* **118**, e2106124118 (2021).
- [3] H. Suzuki *et al.*, *Nano Lett* **23**, 4533 (2023).

Strain Modulation to Moiré Superlattices in Transition Metal Dichalcogenide van der Waals Heterostructures

Hao Ou¹, Koshi Oi¹, Rei Usami¹, Takahiko Endo², Keisuke Shinokita³, Kazunari Matsuda³, Yasumitsu Miyata², Jiang Pu⁴, Taishi Takenobu¹

¹Department of Applied Physics, Nagoya University, ²Department of Physics, Tokyo Metropolitan University, ³Institute of Advanced Energy, Kyoto University, ⁴Department of Physics, Tokyo Institute of Technology
E-mail: takenobu@nagoya-u.jp

1. Introduction

The existence of moiré pattern in van der Waals heterostructures brings highly tunable electronic structure and rich physical properties [1-2], which opens the possibility of using the moiré heterostructures to simulate quantum phenomena in condensed-matter systems [3]. The controllability to moiré heterostructure greatly depends on the symmetry and period of moiré pattern. Currently the pattern is determined by material choice and twist angle. Meanwhile, there have been several studies showing that the heterostrain (that is, the strain state difference between monolayers) also significantly modulates the moiré pattern and corresponding physical properties of heterostructure [4-5]. However, experimental realization of controlled heterostrain introduction remains challenging. Here, we report the observation of continuous modulation of moiré pattern by uniaxial strain application.

2. Results and Discussion

We fabricated twisted bilayer WSe₂ on flexible polyethylene naphthalate (PEN) substrates using dry transfer method (Fig. 1a). We used exfoliated hBN flake to pick up two WSe₂ monolayers with a twist angle. Then flipped the whole stack and transferred it onto PEN substrate. To investigate the relationship between heterostrain and twist angle, we fabricated samples with different twist angles. We used piezoresponse force microscopy (PFM) to directly resolve the moiré pattern [6] (Fig. 1a). Clear moiré patterns were observed (Figs. 1b-d), indicating the effectiveness of the proposed sample structure and fabrication method.

We then bent the PEN substrate continuously by mounting it on metallic molds with different surface curvatures. Because of the weakness of van der Waals interaction between two monolayers of WSe₂, heterostrain emerges. We observed the variation of moiré patterns in samples with a variety of twist angles. For sample whose twist angle is close to 0°, we observed a macroscopic shift and distortion of moiré domain. For the sample with twist angle of ~1.3° (Fig. 1b-d), by designing the status of strain, we found a continuous transition of moiré pattern. More interestingly, the hexagonal pattern changes into rectangular shape, as indicated by angle variation and FFT images. The transition indicates that the preliminary three-fold symmetry of strain-free sample was effectively broken into nearly two-fold. The results above indicate that the proposed structure is able to introduce heterostrain intentionally and effectively. We expect such method is able to tune

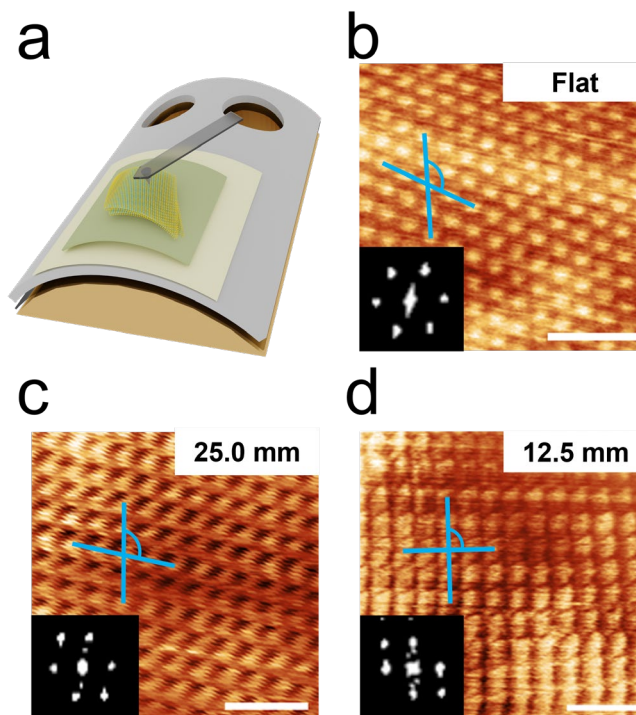


Fig.1 a. Schematic the device structure for uniaxial heterostrain application. b-d. Evolution of ~1.3° stacked bilayer WSe₂ when mold curvature was flat (b, 0% strain), 25.0 mm (c, 0.25%) and 12.5 mm (d, 0.5%), respectively. Insets show the corresponding FFT images. Scale bars: 50 nm.

the geometry of moiré pattern on demand, which then leads to the change of related physical properties and phenomena.

3. Conclusions

In this study, we successfully observed the continuous transition of moiré patterns. We found a macroscopic deformation of moiré domain for nearly 0° stacked bilayer. In ~1.3° stacked bilayer, a gradual transition of moiré pattern from hexagonal shape to rectangles was observed. The results prove the reliability of the method to modify the properties of moiré heterostructures.

References

- [1] Y. Cao, et al., *Nature* **556** (2018) 80.
- [2] K. L. Seyler, et al., *Nature*, **567** (2019) 66.
- [3] D. M. Kennes, et al., *Nat. Phys.* **17** (2021) 155.
- [4] Z. Bi, et al., *Phys. Rev. B* **100** (2019) 035448.
- [5] Y. Bai, et al., *Nat. Mater.* **19** (2020) 1068.
- [6] L. J. McGilly et al., *Nat. Nanotechnol.* **15** (2020) 580.

Pd Decoration at Vertical Edge of MoS₂ for Enhanced NO₂ Sensitivity: A DFT Study

Aditya Kushwaha¹, 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

Gas sensors are vital for safety, air quality monitoring, industrial enhancement, and emission compliance [1]. NO₂, a harmful gas released from the burning of fossil fuels, poses health hazards and contributes to pollution. Decorating noble metals on 2D transition metal dichalcogenide (TMD) nanomaterial-based gas sensors provides benefits like enhanced sensitivity, selectivity, fast response, and so on [2]. In this work, density functional theory (DFT) study compared NO₂ sensing in pristine MoS₂, Pd decorated at basal plane of MoS₂ (Pd-B-MoS₂), and Pd decorated at vertical edge of MoS₂ (Pd-V-MoS₂). Pd nanoparticles (NPs) decoration (top site) induce catalytic oxidation by extracting electrons from MoS₂ through Fermi level disparities [3]. NO₂, an electron-repelling compound, withdraws electrons from Pd-NPs. The spillover effect in Pd-V-MoS₂ amplifies its sensing capabilities by offering additional reactive Mo sites [4]. Pd-V-MoS₂ showed higher NO₂ sensitivity than MoS₂ and Pd-B-MoS₂.

2. COMPUTATIONAL METHODS

This study utilized material studio software with the DMol³ package for DFT calculations. Optimization is performed with a 5x5x1 k-point grid and a global cut-off radius of 4.9 Å. 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. The Perdew-Burke-Ernzerh generalized gradient approximation (GGA-PBE) with the double numerical plus polarization (DNP) basis set was employed for the exchange-correlation term [5]. Grimme's method with DFT Semi-core Pseudopotentials (DSPP) was used for calculating adsorption energies.

3. Result and Discussion

Fig. 1 displays 3x3x1 supercell structures of pristine MoS₂, Pd-B-MoS₂, and Pd-V-MoS₂, and their bandgap calculations using DMol³ package, yielded values are 1.655eV, 1.531eV, and 0.082eV, respectively. Fig. 2 shows the charge density difference (CDD) between NO₂ and sensing layer. According to Mulliken analysis, the total charge over NO₂ was -0.014e, -0.179e, and -0.224e for pristine MoS₂, Pd-B-MoS₂, and Pd-V-MoS₂, respectively. Pd-V-MoS₂ exhibited higher electron withdrawal, attributed to the spillover effect and the presence of more active sites in comparison to the other configurations. Moreover, fig. 2 represents the most stable configuration among the proposed structures. The adsorption energy (E_{ad}) was calculated using eq 1 [6]:

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

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} values were -0.203 eV, -1.023 eV, and -2.914 eV for pristine MoS₂, Pd-B-MoS₂, and Pd-V-MoS₂, respectively. Therefore, the Pd-V-MoS₂ configuration exhibited lower adsorption energy.

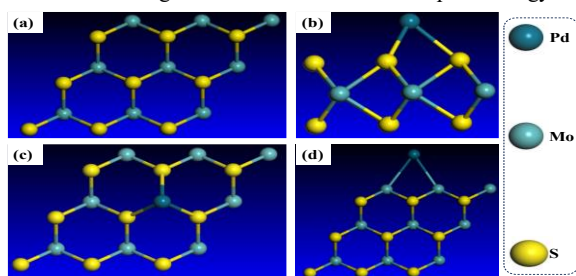


Fig. 1. Supercell of (a). Pristine MoS₂, (b and c). Pd-B-MoS₂, (d). Pd-V-MoS₂

Fig. 3 illustrates the sensing mechanism of the proposed structure. Pd nanoparticles (NPs) facilitate catalytic oxidation, extracting electrons from the MoS₂ monolayer due to the difference in Fermi levels. NO₂, being electron-withdrawing, withdraws electrons from Pd-NPs. The spillover effect in Pd-V-MoS₂ provides more active Mo sites, enhancing its sensing performance.

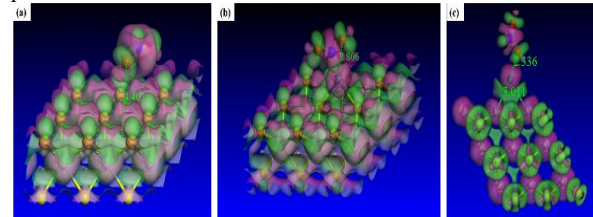


Fig. 2. CDD diagram of (a). Pristine MoS₂, (b). Pd-B-MoS₂, and (c). Pd-V-MoS₂. Green (Pink) color depicts electron accumulation(depletion)

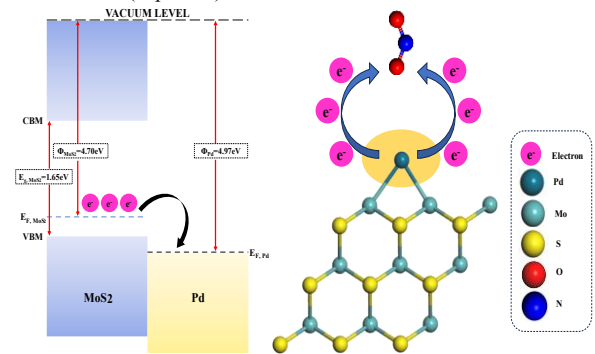


Fig. 3. Schematic diagram of sensing mechanism for the proposed structure

4. Conclusion

MoS₂ and Pd decorated MoS₂ structures are investigated for the sensing of NO₂ molecule using the DFT method. The result demonstrates that the Pd-V-MoS₂ is a potential candidate for NO₂ sensing among the proposed structures. This is due to the spillover effect and high active sites were available in vertical oriented MoS₂ structure.

REFERENCES

- [1] Vardhan, Shalini, and Ritu Raj Singh. "Design, simulation and performance comparison of Sol rectangular waveguide and SMF for methane detection." In *Integrated Photonics Platforms II*, vol. 12148, pp. 107-112. SPIE, 2022.
- [2] Wadhwa, Riya, Ashok Kumar, Ranjini Sarkar, Prajna Parimita Mohanty, Deepu Kumar, Sonia Deswal, Pradeep Kumar et al. "Pt Nanoparticles on Vertically Aligned Large-Area MoS₂ Flakes for Selective H₂ Sensing at Room Temperature." *ACS Applied Nano Materials* 6, no. 4 (2023): 2527-2537.
- [3] Suh, Jun Min, Young-Seok Shim, Ki Chang Kwon, Jong-Myeong Jeon, Tae Hyung Lee, Mohammadreza Shokouhimehr, and Ho Won Jang. "Pd-and Au-decorated MoS₂ gas sensors for enhanced selectivity." *Electronic Materials Letters* 15 (2019): 368-376.
- [4] Cui, Hao, Dachang Chen, Ying Zhang, and Xiaoxing Zhang. "Dissolved gas analysis in transformer oil using Pd catalyst decorated MoSe₂ monolayer: A first-principles theory." *Sustainable Materials and Technologies* 20 (2019): e00094.
- [5] Xiao, Zhen, Wei Wu, Xiangwei Wu, and Youfa Zhang. "Adsorption of NO₂ on monolayer MoS₂ doped with Fe, Co, and Ni, Cu: A computational investigation." *Chemical Physics Letters* 755 (2020): 137768.
- [6] Zhang, Dongzhi, Qi Li, Peng Li, Maosong Pang, and Yuwei Luo. "Fabrication of Pd-decorated MoSe₂ nanostructures and density functional theory simulation toward ammonia sensing." *IEEE Electron Device Letters* 40, no. 4 (2019): 616-619.

Upconversion electroluminescence in van der Waals tunnel diodes

National University of Singapore¹, ° Goki Eda¹

E-mail: g.eda@nus.edu.sg

Plasmonic tunnel junctions comprising van der Waals semiconductor are an attractive platform where the interplay between inelastically tunneling electrons, surface plasmons, and excitons is expected to give rise to novel light emission phenomena. Here, we report observation of peculiar upconversion electroluminescence in van der Waals tunnel diodes comprising a monolayer transition metal dichalcogenide (TMD) in the electron tunneling pathway. The device exhibits bimodal electroluminescence with a broad low energy band and a narrow high energy band. Interestingly, the high energy emission, which is attributed to the TMD ground exciton, is found to turn on at applied biases significantly lower than the threshold defined by its emission energy whereas the low energy emission, which arises from plasmonic emission, strictly obeys the quantum cut-off (Figure 1). We examine several possible model and show that momentum-indirect excitation of high energy carriers enabled by inelastic electron tunneling is a key component enabling the apparent energy gain.

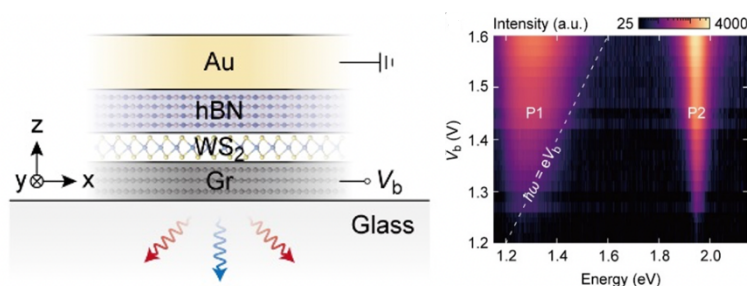


Figure 1. (left) Side-view schemata of a van der Waals tunnel diode device. (right) Emission intensity as a function of bias voltage and energy.

Elucidating Upconversion Photoluminescence Mechanisms in Air-Suspended Single-Walled Carbon Nanotubes

Daichi Kozawa^{1,2,3}, Yuichiro K. Kato^{1,2}

¹ RIKEN Center for Advanced Photonics, ² RIKEN Cluster for Pioneering Research,

³ MANA, National Institute for Materials Science

E-mail: kozawa.daichi@nims.go.jp

Upconversion photoluminescence is the transformative process of lower energy photons into higher energy counterparts and holds intriguing potential for both fundamental science and advanced applications. This process is not only scientifically fascinating but also pivotal for sectors such as telecommunications, photonics, and renewable energy. The ability to perform upconversion in the near-infrared region could introduce new photonic devices, invigorate data transmission technologies, and enrich renewable energy fields.

An exceptional candidate to study and harness near-infrared upconversion is single-walled carbon nanotubes (SWNTs) [1]. The unique structure and distinct optical properties of SWNTs make them suitable platforms to investigate light-matter interactions. Their attractiveness is amplified by tightly bound excitons and strong exciton-phonon interactions inherent to these one-dimensional nanostructures. The ability of SWNTs to emit photons within the telecom band underscores their versatility across a broad range of potential applications. [2].

Despite the significant attention given to SWNTs, the study of upconversion photoluminescence (UCPL) within these nanostructures leaves many questions unanswered and presents numerous technical challenges. For instance, while a general understanding of the phonon-mediated upconversion process is available, there is still a lack of clarity surrounding the specific phonon modes and energies involved. Furthermore, the precise influences of exciton-phonon scattering, temperature, and different SWNT chiralities on upconversion efficiency remain areas to be further explored.

In this study, we elucidate the high-efficiency UCPL in air-suspended single-walled carbon nanotubes (SWNTs). UCPL is detected even in individual SWNTs despite the sizeable energy separation between the emission energy and excitation energy. We conduct power dependence of UCPL intensity and observe linear response, ruling out two-photon excitation as an upconversion source. Our exhaustive exploration of UCPL spectra across various chiralities highlights the universal presence of this upconversion process and energy separation dependence of UCPL intensity. In conducting upconversion photoluminescence excitation (UCPLE) spectroscopy across a broad range of energy separations, we discern UCPL peaks as sidebands of *K*-momentum dark excitons where specific phonon modes at the *K* point are involved [3]. The high efficiency of the upconversion process can be attributed to the one-phonon process and the abundance of low-energy phonons. To better interpret these findings, we develop a physical model of exciton-phonon scattering which successfully reproduces UCPL spectra. This model also allows for deducing phonon energies and relative amplitudes of matrix element by fit to the UCPL spectra. Additionally, our model accurately predicts the temperature dependence of UCPL spectra. By clarifying the complexities of the upconversion phenomena in SWNTs, this study holds the potential to drive development in nanotube-based device applications.

Acknowledgements

This work is supported in part by JSPS (KAKENHI JP20H02558, JP23H00262 to Y.K.K., JP22H01893 to D.K.), and MEXT (ARIM JPMXP1222UT1136). We thank the Advanced Manufacturing Support Team at RIKEN for technical assistance.

References

- [1] N. Akizuki, S. Aota, S. Mouri, K. Matsuda, and Y. Miyauchi, [Nat. Commun. 6, 8920 \(2015\)](#).
- [2] D. Kozawa, X. Wu, A. Ishii, J. Fortner, K. Otsuka, R. Xiang, T. Inoue, S. Maruyama, Y. Wang, and Y. K. Kato, [Nat. Commun. 13, 2814 \(2022\)](#).
- [3] P. M. Vora, X. Tu, E. J. Mele, M. Zheng, and J. M. Kikkawa, [Phys. Rev. B 81, 155123 \(2010\)](#).

Determination of in- and out-of-plane complex refractive index spectra of single-chirality carbon nanotube membranes

Hengkai Wu¹, Taishi Nishihara¹, Akira Takakura¹, Kazunari Matsuda¹,
Takeshi Tanaka², Hiromichi Kataura², Yuhei Miyauchi¹

¹ Institute of Advanced Energy, Kyoto University

² Nanomaterials Research Institute, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)
E-mail: wu.hengkai.68c@st.kyoto-u.ac.jp

Single-walled carbon nanotubes (SWCNTs) are promising opto-functional materials due to their strong light-matter interaction enabled by exciton states [1,2]. Since they are quasi-one-dimensional (1D) materials, they exhibit significantly different optical response to light with polarization parallel and perpendicular to the nanotube axis [3,4]. Recently, nanotube membranes with specific chiral structure (chirality) are promising for photonic [5] and opto-thermal applications [6] because the sharp and chirality-dependent excitonic resonance remains robust even at high temperature [6]. For the 1D feature of SWCNTs, their membranes which are 3D assemblies of SWCNTs with most of them oriented in the in-plane direction, are expected to exhibit anisotropic optical responses depending on the light propagating direction to the membrane plane. However, despite well-clarified response of an individual SWCNT, the anisotropic complex refractive index spectra of SWCNT membranes remain to be revealed yet, hindering prediction of angle-dependent optical responses and the design of SWCNT-based devices for the applications mentioned above.

Here, we report in- and out-of-plane complex refractive index spectra of a single-chirality SWCNT membrane, as examined using polarization- and angle-resolved reflection spectroscopy. The membrane was fabricated via the vacuum filtration of (6,5) SWCNT dispersion prepared using gel chromatography [5,7]. We measured the incident angle dependence of the reflectance spectra of *s*- and *p*-polarized light on the membrane in near-infrared-to-visible region (0.8–2.4 eV) using a homemade optical setup (Figure 1). We determined the in-plane complex refractive index spectrum from the reflectance of *s*-polarized light with different angles. The out-of-plane one is determined from the angle dependence of reflectance of *p*-polarized light, considering transverse exciton responses [3,4]. We found that the out-of-plane refractive index is almost constant (~ 1.9) in this region comparing to the wavy in-plane one, and the small contribution from the transverse exciton resonance is indispensable for properly predicting angle-dependent optical responses of the membrane. The complete knowledge on both in- and out-of-plane complex refractive index spectra of single-chirality SWCNT membrane facilitates the design of precise and diverse photonic and thermo-optic devices based on SWCNTs [8].

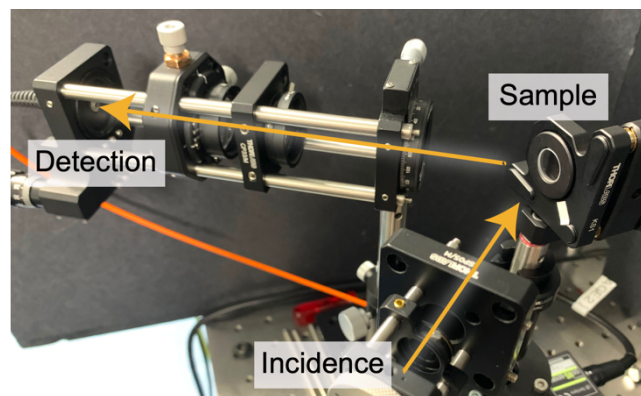


Figure 1: Homemade setup for incident angle-dependent reflectance measurement, consisted of an incidence part, a sample holder, and a detection part. The reflectance spectra at each angle are measured by changing the position of incidence and detection parts.

Acknowledgements

This work was supported by JST CREST Grant Number JPMJCR1815, and JSPS KAKENHI Grant Number JP22K18287(Y.M.), JP19K15384(T.N.), JP21K14486(T.N.), and 23KJ1353(H.W.). This work was supported by Kyoto University Nano Technology Hub in “Nanotechnology Platform Project” sponsored by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT), Japan.

References

- [1] T. Ando, J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 1066.
- [2] F. Wang, G. Dukovic, L. E. Brus, T. F. Heinz, Science **308** (2005) 838.
- [3] H. Ajiki, T. Ando, Phys. B: Condens. Matter **201** (1994) 349.
- [4] Y. Miyauchi, M. Oba, S. Maruyama, Phys. Rev. B **74** (2006) 205440.
- [5] T. Nishihara, A. Takakura, M. Shimasaki, K. Matsuda, T. Tanaka, H. Kataura, Y. Miyauchi, Nanophotonics **11** (2022) 1011.
- [6] T. Nishihara, A. Takakura, Y. Miyauchi, K. Itami, Nat. Commun. **9** (2018) 3144.
- [7] Y. Yomogida, T. Tanaka, M. Zhang, M. Yudasaka, X. Wei, H. Kataura, Nat. Commun. **7** (2016) 12056.
- [8] H. Wu, T. Nishihara, A. Takakura, K. Matsuda, T. Tanaka, H. Kataura, Y. Miyauchi, *to be submitted*.

Changing from diffusive to superdiffusive transport in carbon nanotube networks via nematic order control

Filchito Renee G. Bagsican^{1,2}, Michael Wais^{3,4}, Natsumi Komatsu^{5,6}, Weilu Gao⁷, Kazunori Serita¹, Hironaru Murakami¹, Karsten Held⁴, Iwao Kawayama^{1,8}, Junichiro Kono^{5,1,3}, Marco Battiato³, and Masayoshi Tonouchi¹

¹Osaka Univ., Japan, ²FSU, OIST, Japan, ³NTU, Singapore, ⁴TU Wien, Austria, ⁵Rice Univ., USA, ⁶Univ. of California-Berkeley, USA, ⁷Univ. of Utah, USA, ⁸Kyoto Univ., Japan

E-mail: filchitorenee.bagsican@oist.jp

Carbon nanotubes (CNTs) exhibit extremely anisotropic electronic and optical properties due to the confinement of quasiparticles in one-dimension. This anisotropy disappears in an ensemble of randomly oriented CNTs, together with some other properties that make them attractive for certain device applications. However, it is unclear if this disorder suppresses other types of behaviors as well. In this work [1], we addressed this question by using a combination of terahertz (THz) emission and photocurrent experiments (Fig. 1a) with out-of-equilibrium numerical simulations to compare the dynamics of quasiparticles under strong electric fields in aligned and random CNT networks. We found that the degree of alignment has a strong influence on the dynamics and thermalization pathways of quasiparticles. In aligned CNTs, the electrons show superdiffusive transport properties and have a high probability of acquiring enough kinetic energy to produce low energy excitons via exciton impact ionization [2]. However, this process is significantly suppressed in random CNTs. Due to the increased impurity-like scatterings in random CNTs that arise from multiple tube distortions in the intersecting tubes, the electrons show diffusive transport properties and do not gain the kinetic energy required for exciton impact ionization. This difference in electron transport regimes (superdiffusive vs diffusive) leads to drastically different bias-dependence of THz emission amplitude and photocurrent in aligned and random CNT networks as shown in Figs. 1b and 1c, respectively.

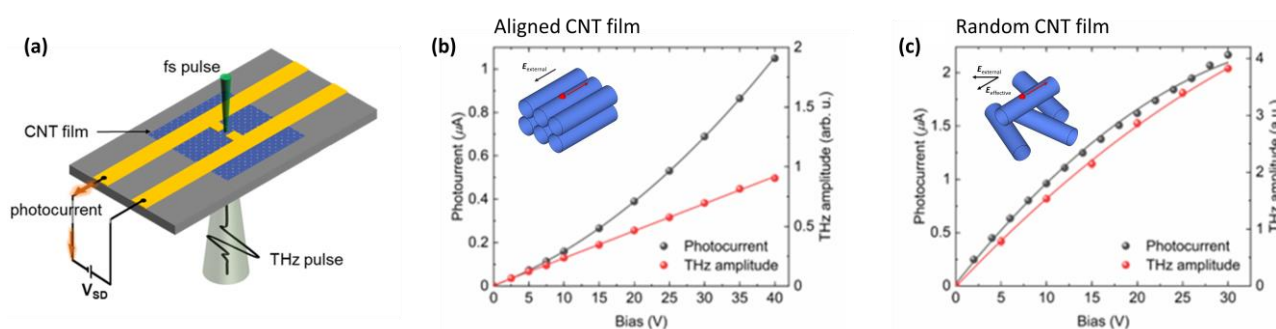


Fig. 1. Device configuration (a). Terahertz emission amplitude and photocurrent as a function of bias for aligned (b) and random (b) CNT films. Adapted from [1].

Acknowledgements

This work is supported by Robert A. Welch Foundation (C-1509), Air Force Office of Scientific Research (FA9550-22-1-0382), JST CREST (JPMJCR1715 and JPMJCR2202), US National Science Foundation (PIRE-2230727), Carbon Hub of Rice University, Nanyang Technological University (NAP-SUG), Austrian Science Fund (P36213 and Doctoral School W1243 Solids4Fun (Building Solids for Function)), JSPS KAKENHI (JP18KK0140, JP23H00184, and JP22H01550), JSPS Core-to-Core Program, Osaka University Program for Promoting International Joint Research and Iketani Science and Technology Foundation.

References

- [1] Wais, M., *et. al*, Nano Lett. 23, 10 (2023) 4448–4455.
- [2] Bagsican, F.R.G., *et. al*, Nano Lett. 20, 5 (2020) 3098–3105.

Plasmonic rectification effect in an asymmetric periodically gated graphene field effect transistor for THz detection

Chao Tang^{1,2}, Hironobu Seki^{1,3}, Koichi Tamura^{1,3}, Shinnosuke Uchigasaki^{1,3},

Hirokazu Fukidome¹, Yuma Takida⁴, Hiroaki Minamide⁴, Akira Satou¹ and Taiichi Otsuji¹

¹ Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University ² Frontier Research Institute for Interdisciplinary Sciences, Tohoku University ³ School of Engineering, Tohoku University ⁴ RIKEN Center for Advanced Photonics, RIKEN
E-mail: tang.chao.c4@tohoku.ac.jp

1. Introduction

In this study, we propose a novel approach to THz wave detection using an asymmetrically gated graphene field-effect transistor (GFET). By utilizing two sets of gates arranged in an asymmetric manner, we achieve periodic modulation of the carrier density along the channel. Previous research has explored various mechanisms for THz detection, including the photo-thermalelectric (PTE) effect, photovoltaic (PV) effect, bolometric (BM) effect, and plasma rectification (PR) [1]. While PR [2] has been observed in a direct-current photoresponse [3], but yet to be in fast temporal response. Our study aims to provide direct evidence of PR-based fast-speed detection in a GFET. We apply a specific bias to the asymmetrically gated GFET, resulting in a periodically arranged carrier density and observing clear evidence of PR in the graphene channel.

2. Experiments and results

We fabricated the GFET using similar methods as described in a previous publication [4], but with the use of ALD for the dielectric layer instead of CVD (Fig. 1a). THz pulse detection measurements were conducted on the fabricated GFET using an injection-seeded THz parametric generator (is-TPG) [5] as the pulsed-CW THz light source. The THz pulse had a center frequency of 0.95 THz and an envelope pulse width of 155 ps. To verify the detection of plasma

rectification along the channel, we set the bias of the source and drain electrodes to 0 V. Additionally, we ensured that the same metal type was used for both the source and drain electrodes, eliminating any potential gradient along the graphene channel. As a result, even if the channel carriers were excited by THz radiation, no photoresponse could be promoted through the PTE or PV effects. Fig. 1b shows the photovoltage detected from the source and drain under different G1-G2 bias conditions. The charge neutral point voltage (V_{CNP}) was identified to be +4 V by the ambipolar characteristics (Fig. 1b inset). During the THz detection experiments, we applied a bias of -10 V to the G1 electrode (V_{G1}) to introduce holes into the channel. Simultaneously, we varied the bias of V_{G2} to -10, 0, +4, and +10 V.

Our observations indicate that when carriers of different types are injected into the region beneath G2 ($V_{G2}=10V$), no photovoltage is generated in response to THz radiation. This can be attributed to the recombination of holes underneath G1 with the electrons underneath G2, preventing carriers from reaching the drain electrode and generating a photovoltage. On the other hand, when carriers of the same type but with different densities (-10 V, 0 V, 4 V) are injected, fast photoresponse was observed thanks to the PR mechanism (Fig. 1b). This phenomenon cannot be solely explained by the PTE or PV effect, as no bias was applied to the source and drain electrodes, thereby eliminating any potential gradient that could drive photo-excited carriers from the source to the drain electrode. Moreover, the photovoltage reaches its maximum when G2 is depleted, and it increases as the difference in carrier density between G1 and G2 becomes larger. These phenomena can be attributed to the PR effect [6].

3. Conclusion

Our study demonstrates that by adjusting the carrier distribution in the channel through the biasing of G1 and G2, without applying any bias to the source and drain electrodes, the detection of THz radiation can be achieved through plasmonic rectification. This highlights the potential of using an asymmetric periodically gated GFET for THz detection based on plasmonic effects.

Acknowledgments: A part of this work was financially supported by RIEC Tohoku University, FRIS, Tohoku University, also support by The Japan Society for Promotion of Science KAKENHI Grants #21H04546, #22KF0430, and the Commissioned Research by NICT #01301, Japan.

References

- [1] F.H. Koppens, et al., *Nat. Nanotechnol.* **9** (2014) 780.
- [2] M. Dyakonov, M. Shur, *IEEE Trans. Elec. Dev.* **43**, (1996) 3.
- [3] J.A. Delgado-Notario et al., *Nanophoton.* **11**, (2022) 519.
- [4] K. Tamura, et al. *APL Photon.* **7** (2022) 126101.
- [5] Y. Takida, et al. *Opt. Exp.* **30** (2022) 11217.
- [6] V.V. Popov, *Appl. Phys. Lett.* **102** (2013) 253504.

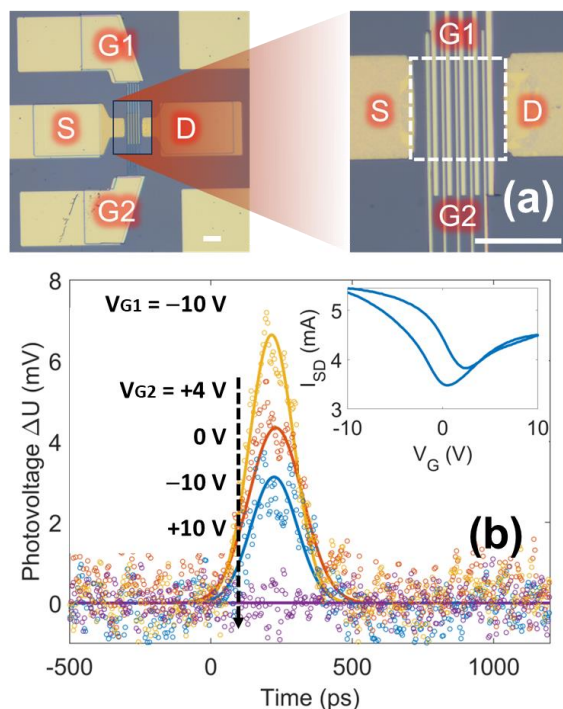


Fig. 1. a. Microscopy image of an asymmetric periodically gated GFET. G1, G2, S, D indicate the two sets of gate electrodes, source and drain gate, respectively. The dashed line indicates the graphene channel region. (Scale bar: 20 μm) b. The photovoltage response of the device to THz radiation. The time = 0 ps represents the start of radiation on the GFET.

Moiré excitonic states in a twisted WSe₂/MoSe₂ heterobilayer

Keisuke Shinokita

Institute of Advanced Energy, Kyoto University

E-mail: shinokita.keisuke.4r@kyoto-u.ac.jp

1. Introduction

Atomically thin transition metal dichalcogenides (TMDs) are considered ideal two-dimensional systems with intriguing optical properties associated with valley degrees of freedom [1]. Van der Waals heterostructures composed of TMDs provide a fascinating platform for engineering optically generated excitonic properties through moiré patterns, which arise from the angular mismatch, leading to novel quantum phenomena. The periodic trap potential of the moiré pattern enables the formation of spatially ordered ensembles of zero-dimensional excitons, known as moiré excitons. These excitons offer the potential for dense coherent quantum emitters and quantum simulation of many-body physics [2]. In this study, we present the characterization of excitonic states within the moiré potential in a twisted WSe₂/MoSe₂ heterolayer.

2. Results and Discussion

Figure 1(a) shows the optical microscopy image of the WSe₂/MoSe₂ heterobilayers. The twist angle of the heterobilayers is $12 \pm 1^\circ$. Figure 1(b) displays the photoluminescence (PL) spectra at 10 K. Several distinct peaks in the PL spectra, characterized by a linewidth of approximately 0.6 meV, signify the response of zero-dimensional interlayer excitons trapped within the moiré potential, known as moiré excitons.

Figure 1(c) depicts counterplots of photoluminescence excitation (PLE) spectra. The resonance behavior is clearly illustrated in the 2D color map of excitonic emissions shown in Figure 1b, representing the dependence on excess energy. Notably, the emission of moiré excitons is enhanced when excited with excess energies of approximately 24 and 48 meV, indicating an interaction between the moiré excitons and phonons. Conversely, the PL intensities significantly decrease under off-resonance conditions, suggesting the existence of discrete energy levels for excitons within the moiré potential [3].

In Figure 1(d), circularly polarized photoluminescence (PL) spectra are presented under σ^+ excitation. The optical selection rule of the valley-polarized moiré excitons causes the σ emission stronger than the σ^+ emission, resulting in negative circular polarization. Moreover, the σ emission experiences resonant enhancement when subjected to σ^+ excitation with an excess energy of approximately 24 meV, while the σ^+ emission remains unaffected. This observation suggests the resonant excitation of a spin-triplet state with σ^+ excitation, followed by relaxation to a spin-singlet state accompanied by the emission of

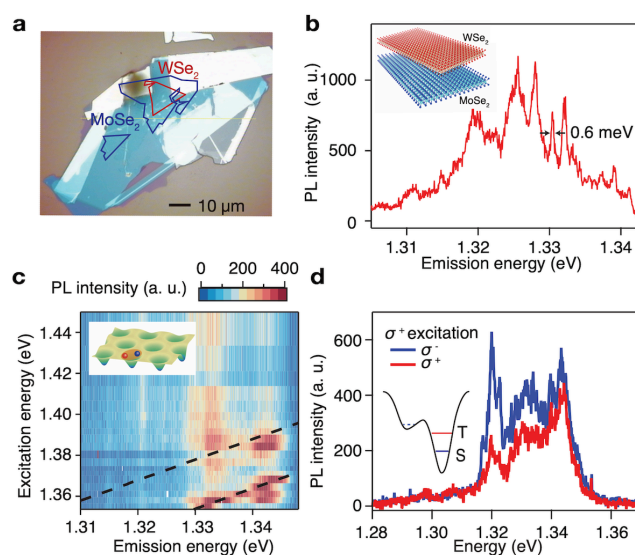


Fig. 1. (a) Optical microscopy image of a twisted WSe₂/MoSe₂ heterobilayer. (b) Photoluminescence (PL) spectrum at 10 K. (c) 2D color map showing the PL intensity as a function of excitation energy. The black dashed line indicates excess energies of 24 and 48 meV. (d) Circularly polarized PL spectra under σ^+ excitation. The inset depicts the fine structures of the moiré excitons.

a chiral phonon, resulting in σ emission from the spin-singlet state. This behavior reflects the fine structure of excitons within the moiré potential [4].

3. Conclusions

The excitonic states within a moiré potential were examined in a twisted WSe₂/MoSe₂ heterobilayer. Photoluminescence excitation (PLE) spectroscopy revealed the discrete energy levels present within the moiré potential. Furthermore, circularly-polarized photoluminescence (PL) spectroscopy provided insights into the fine structures of the moiré excitons.

Reference

- [1] K. Shinokita *et al.*, Adv. Funct. Mater. **29**, 190260 (2019).
- [2] K. L. Seyler *et al.*, Nature **567**, 66 (2019).
- [3] K. Shinokita *et al.*, Nano Lett. **21**, 5938 (2021).
- [4] K. Shinokita *et al.*, ACS Nano **16**, 16862 (2022).

Remote charge modulation effect of monolayer MoS₂ using periodically polarization-inverted structure and hBN spacer layer

Ritsumeikan Univ.¹, Osaka Univ.², Kyoto Univ.³, Kaipeng Rong¹, Ryosuke Noro², Hayato Nishigaki², Mingda Ding², Yao Yao², Taiki Inoue², Ryuji Katayama², Yoshihiro Kobayashi², Kazunari Matsuda³, °Shinichiro Mouri¹

E-mail: gr0466er@ed.ritsumei.ac.jp

Molybdenum disulfide (MoS₂) is a typical two-dimensional layered material that exhibits unique properties offering opportunities for the development of nanoelectronics, valleytronics, and spintronics. Exploring the way to modulate carrier distribution is an important issue for controlling these device performance^[1]. Here we demonstrate the “remote” spatial carrier modulation method for MoS₂ using periodically polarization inverted ferroelectric structure and spacer h-BN layers.

We transferred exfoliated few layers hBN and monolayer MoS₂ flake sequentially onto a periodically polarization-inverted structure formed on a ferroelectric substrate MgO: LiNbO₃. The schematic cross-sectional image of the sample was shown in upper of Fig.1. Photoluminescence (PL) mapping measurement was carried to investigate the distribution of charge density of monolayer MoS₂. Lower of Fig. 1 shows the PL mapping image of this sample, expressing the intensity ratio of trion peak (I_T, ~1.84eV) and exciton peak (I_X, ~1.88 eV), which changes according to the charge density. It clearly shows that the exciton weight of monolayer MoS₂ changes spatially, depending on the polarization of substrate. We also plot the I_T/I_X value in Fig.1(b) along the line shown in Fig 1 (a). It shows that the value of I_T/I_X approximately equals 0.5 and 2 relatively on down- and up-domain.

These results indicate that electron density is larger on up-domain region as compared with down-domain region. Rough estimation using Saha equation^[2] provides that the carrier density on up domain is about 4 times larger than that on down domain. It is note that the strong polarization effects of ferroelectric substrate remains even through the existence of few layer h-BN. There could be two possibilities to account this “remote” spatial carrier modulation as following. The tunneling charge transfer through h-BN layer via impulity states is one possible mechanism. Another is the strong surface electric field move charge carriers directly resulting in the redistribution. Detail model will be discussed in the presentation.

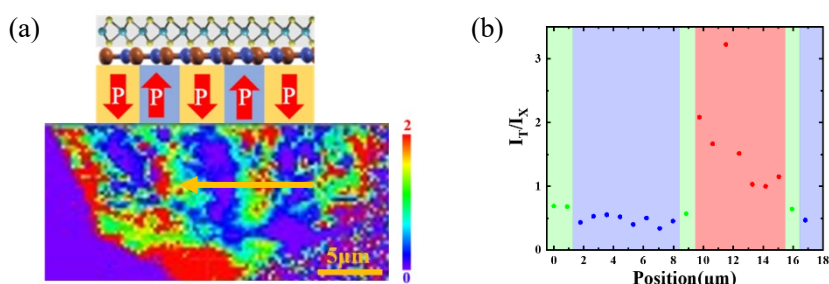


Fig.1 (a) Cross-sectional diagram of the sample and PL intensity ratio (I_T/I_X) mapping
(b) The change of PL intensity ratio along the line in Fig.1 (a).

[1] X. Wang *et al.*, Adv. Mater. **27**, 6575-6581(2015).

[2] S. Mouri *et al.*, Nano Lett. **13** (12), 5944-5948 (2013).

This work was supported by JSPS KAKENHI grant number 22H05471, 21H01017, 21K18913, and NEDO “Intensive Support Program for Young Promising Researchers”

Observation of quantum coherence of a single moiré exciton in nano-fabricated twisted MoSe₂/WSe₂ heterobilayers

Haonan Wang¹, Heejun Kim¹, Duanfei Dong¹, Keisuke Shinokita¹, Kenji Watanabe², Takashi Taniguchi³ and Kazunari Matsuda¹

¹Institute of Advanced Energy, Kyoto University, ²Research Center for Electronic and Optical Materials, NIMS, ³Research Center for Materials Nanoarchitectonics, NIMS

E-mail: wang.haonan.36t@st.kyoto-u.ac.jp

1. Introduction

Recently, rapid progress on artificial van der Waals (vdW) structures by stacking atomically thin two-dimensional materials has opened up new opportunities for the design of novel quantum systems [1]. Three-dimensional confinement provided by the periodic ordered potential traps not only makes moiré system promising for achieving long coherence time [2], but also suitable for exploring interaction between systems. However, broad emissions attributed to ensemble-averaged multiple peaks caused by inhomogeneity of the moiré potentials hinder the detail exploration of quantum coherence and interference of the moiré system.

2. Results

In this study, we have developed and applied a new strategy of nano-fabrication to observe quantum coherence and interference of a single moiré exciton in MoSe₂/WSe₂ vdW heterobilayers beyond the diffraction limit of light. A significant single and sharp photoluminescence (PL) peak from single moiré exciton has been successfully demonstrated by applying reactive-ion-etching to the heterobilayer, as presented in **Figure 1**. With further increasing the excitation powers, the single and sharp PL shows the saturation behaviors. We further investigate the duration of quantum coherence of the single moiré exciton, which reaches beyond 10 ps as well as the accelerated decoherence process with elevating temperature and excitation power density. Moreover, the significant quantum interference indicated by quantum beats from

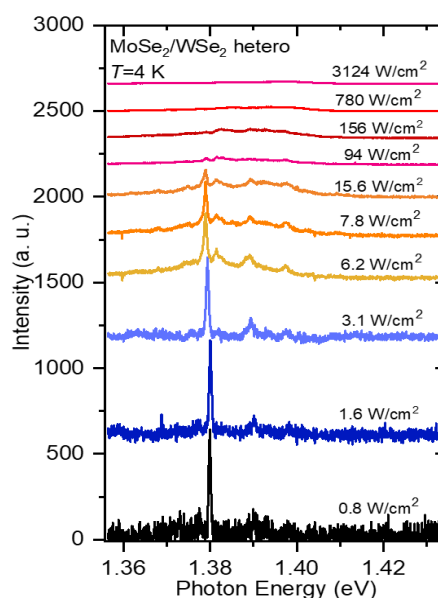


Figure 1 Normalized photoluminescence spectra of MoSe₂/WSe₂ heterobilayer under excitation of various power densities.

temporal interferogram has revealed the coupling between moiré excitons trapped in different moiré potential minima.

3. Conclusions

A new method to realize the optical observation of quantum coherence and interference of single moiré exciton has been demonstrated, which will facilitate potential application toward quantum technologies based on moiré quantum systems.

References

- [1] K.L. Seyler. et al. *Nature*. **567**, 66–70 (2019).
- [2] U. Hendrik. et al. *Science* **363**, 1068–1072 (2019).

Chemically-tailored semiconductor moiré superlattices

Wenjin Zhang¹, Zheng Liu², Hiroshi Nakajo^{3,4,5}, Soma Aoki^{3,4}, Haonan Wan⁶, Yanlin Wang⁶, Yanlin Gao⁷, Mina Maruyama⁷, Takuto Kawakami⁸, Yasuyuki Makino¹, Masahiko Kaneda¹, Tongmin Chen⁹, Kohei Aso⁹, Tomoya Ogawa¹, Takahiko Endo¹, Yusuke Nakanishi¹, Kenji Watanabe¹⁰, Takashi Taniguchi¹¹, Yoshifumi Oshima⁹, Yukiko Yamada-Takamura⁹, Mikito Koshino⁸, Susumu Okada⁷, Kazunari Matsuda⁶, Toshiaki Kato^{3,4}, and Yasumitsu Miyata¹

¹ Department of Physics, Tokyo Metropolitan University, Hachioji 192-0397, Japan; ² Innovative Functional Materials Research Institute, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Nagoya 463-8560, Japan; ³ Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai, 980-8579, Japan ⁴ Advanced Institute for Materials Research (AIMR), Tohoku University, Sendai, 980-8577, Japan; ⁵ KOKUSAI ELECTRIC CORP., Toyama 939-2393, Japan; ⁶ Institute of Advanced Energy, Kyoto University, Kyoto, 611-0011 Japan; ⁷ Department of Physics, Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8571, Japan; ⁸ Department of Physics, Osaka University, Toyonaka, Osaka 560-0043, Japan; ⁹ School of Materials Science, Japan Advanced Institute of Science and Technology (JAIST), Ishikawa 923-1292, Japan; ¹⁰ Research Center for Electronic and Optical Materials, NIMS, Tsukuba 305-0044, Japan; ¹¹ Research Center for Materials Nanoarchitectonics, NIMS, Tsukuba 305-0044, Japan;
E-mail: ymiyata@tmu.ac.jp; kato12@tohoku.ac.jp and wjzhang@tmu.ac.jp

Introduction

The nanoscale periodic potential generated from moiré superlattices provides a new knob to tune and study the flat band effect and correlated physics. To date, moiré superlattices have been obtained using various two-dimensional (2D) materials, such as graphene, hexagonal boron nitride (hBN), transition metal dichalcogenides (TMDCs), and so on. In the 2D materials family, Janus monolayers of TMDCs have two different chalcogen atoms above and below the central metal atom. This asymmetric structure induced an out-of-plane electric field which provides an additional degree of freedom in moiré superlattices. Novel features in Janus materials were predicted by recent theoretical studies, such as: large Rashba spin-orbit coupling^[1], piezoelectricity^[2], and long-lived charge-transfer excitons^[3]. Furthermore, recent calculations showed that excitons in Janus heterobilayer moiré superlattices are possible to realize high-temperature Bose-Einstein condensation state^[3].

Although Janus TMDC monolayers and heterobilayers were obtained using thermal or plasma-assisted chemical reactions and transfer process^[4,5], the experimental evidence of moiré superlattice and related excitonic properties in Janus heterobilayers are still unknown. Importantly, the small lattice mismatch between MX_2 and MXY enables the formation of long-wavelength moiré superlattices, even from non-twisted bilayers in Janus heterobilayers. Therefore, direct preparation of Janus heterobilayers provides a scalable method for making moiré superlattices from MX_2 bilayers. Here, we show experimental evidence for the formation of moiré superlattices and the associated excitonic responses in Janus heterobilayers of $\text{MoSSe}/\text{MoSe}_2$ and WSSe/WSe_2 .

Figure 1a shows the schematic of Janus $\text{MoSSe}/\text{MoSe}_2$ moiré superlattice fabricated from bilayer MoSe_2 using plasma-assisted chemical reactions. After the plasma treatment, moiré pattern was generated because of the mismatch

of lattice constant between MoSSe and MoSe_2 . Figure 1b shows the photoluminescence (PL) spectrum at cryogenic temperature. The sharp PL peaks representing moiré potential trapped exciton emissions were observed. This gives an evidence of successful fabrication of moiré superlattice.

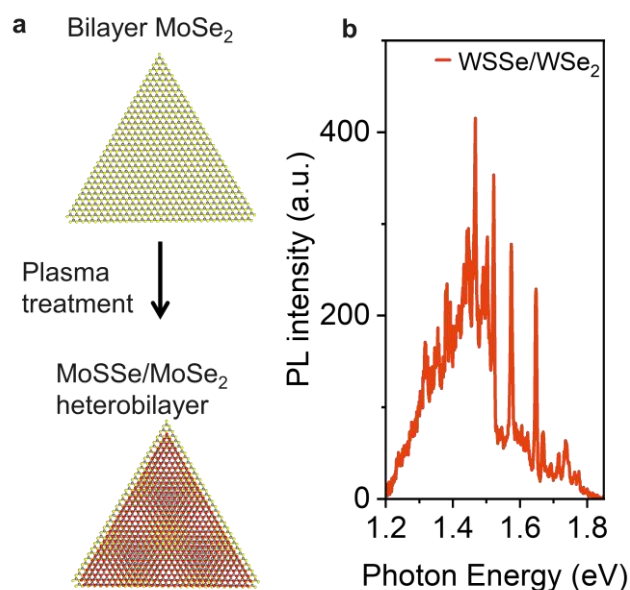


Figure 1. (a) Schematic of moiré superlattice fabricated from bilayer TMDC using plasma assisted chemical reactions. (b) PL spectrum of Janus heterobilayer WSSe/WSe_2 at 8 K.

References

- [1] Q.-F. Yao, et al., Phys. Rev. B 2017, 95, 165401.
- [2] L. Dong, et al., ACS Nano 2017, 11, 8242.
- [3] H. Guo, et al., Sci. Adv. 2022, 8, eabp9757.
- [4] A.-Y. Lu, et al., Nat. Nanotechnol. 2017, 12, 744.
- [5] D. B. Trivedi, et al., Adv. Mater. 2020, 32, 2006320.

 CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.8] Code-sharing Session of 6.1 & 13.3 & 13.5

[22a-A201-1 ~ 12] CS.8 Code-sharing Session of 6.1 & 13.3 & 13.5

Hiroyuki Ota(AIST), Takao Shimizu(NIMS)

Fri. Sep 22, 2023 9:00 AM - 12:15 PM A201 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

-
- △[22a-A201-1] Orientation control of Y-doped HfO₂ thin films using lattice matching
 ○(M2)Yoshiki Maekawa¹, Koji Hirai¹, Kazuki Okamoto¹, Takao Shimizu², Hiroshi Funakubo¹ (1.Tokyo Tech., 2.NIMS)
 9:00 AM - 9:15 AM
- [22a-A201-2] Thickness and composition dependence of electrical property in HfO₂-CeO₂ film
 Koji Hirai¹, Kazuki Okamoto¹, Takahisa Shiraishi^{2,1}, Wakiko Yamaoka³, Risako Tsurumaru³, Yukari Inoue³, Hiroshi Funakubo¹ (1.Tokyo Tech., 2.Kumamoto Univ., 3.TDK Corp.)
 9:15 AM - 9:30 AM
- △[22a-A201-3] Evaluation of ferroelectricity for Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ thin films on Ga₂O₃ substrate
 ○Keigo Naito¹, Koichi Yamaguchi², Takeshi Yoshimura¹, Norifumi Fujimura¹ (1.Osaka Metro. Univ., 2.Osaka Pref. Univ.)
 9:30 AM - 9:45 AM
- [22a-A201-4] Non-heating process for (Hf,Zr)O₂-based ferroelectric thin film transistor fabrication
 ○(M1)Takeshi Asuka¹, Hironori Fujisawa¹, Seiji Nakashima¹ (1.Univ. Hyogo)
 9:45 AM - 10:00 AM
- [22a-A201-5] Electronic structure of the breakdown area in a HfO₂-based ferroelectric film: Laser-based photoemission electron microscopy
 ○Hirokazu Fujiwara¹, Yuki Itoya², Masaharu Kobayashi^{2,3}, Cedric Bareille^{4,5}, Shik Shin^{5,6}, Toshiyuki Taniuchi^{4,5} (1.ISSP, 2.IIS, 3.d.lab, 4.GSFS, 5.MIRC, 6.Univ. of Tokyo)
 10:00 AM - 10:15 AM
- [22a-A201-6] Analysis of Polarized Domain Behavior in Hf-Zr-O Ferroelectric Thin Films
 ○Shinji Migita¹, Shutaro Asanuma¹, Yukinori Morita¹, Hiroyuki Ota¹ (1.AIST)
 10:15 AM - 10:30 AM
- [22a-A201-7] Thickness dependence of E_C in ferroelectric HfO₂
 ○Akira Toriumi¹, Shinji Migita² (1.Free Engineer, 2.AIST)
 10:45 AM - 11:00 AM
- [22a-A201-8] Polarization reversal kinetics in ferroelectric HfO₂
 ○Akira Toriumi¹, Shinji Migita² (1.Free Engineer, 2.AIST)
 11:00 AM - 11:15 AM

- ▲[22a-A201-9] Influence of Electric Field during Holding Time on Imprint Characteristics in $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ MFM Capacitors
○Zhenhong Liu¹, Kasidit Toprasertpong¹, Mitsuru Takenaka¹, Shinichi Takagi¹
(1.Tokyo Univ.)
11:15 AM - 11:30 AM
- △[22a-A201-10] Disturb-free operatin of HfO_2 -FeFET by controlling the $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ interfacial charges
○Takamasa Hamai¹, Kunifumi Suzuki¹, Reika Ichihara¹, Yoko Yoshimura¹, Kiwamu Sakuma¹, Kazuhiro Matsuo¹, Shosuke Fujii¹, Masumi Saitoh¹ (1.Kioxia)
11:30 AM - 11:45 AM
- [22a-A201-11] Effect of Accumulated Read Operation on Polarization State in HZO-FeFET
○Masaki Otomo¹, Kasidit Toprasertpong¹, Mitsuru Takenaka¹, Takagi Shinichi¹
(1.Univ. Tokyo)
11:45 AM - 12:00 PM
- ▲[22a-A201-12] Impact of HZO Scaling in FeFET on the electrical characteristics
○(D)ZUOCHENG CAI¹, KASIDIT TOPRASERTPONG¹, MITSURU TAKENAKA¹, SHINICHI TAKAGI¹ (1.The Univ. of Tokyo)
12:00 PM - 12:15 PM

格子整合による Y 添加 HfO₂ 強誘電体薄膜の配向制御

Orientation control of Y-doped HfO₂ thin films using lattice matching

東京工業大学¹, 物質・材料研究機構²

○(M2)前川 芳輝¹・平井 浩司¹・岡本 一輝¹・清水 荘雄²・舟窪 浩¹

Tokyo Tech¹, NIMS² Y. Maekawa¹, K. Hirai¹, K. Okamoto¹, T. Shimizu², H. Funakubo¹

E-mail: maekawa.y.ai@m.titech.ac.jp

【緒言】蛍石型構造 HfO₂ 基の強誘電性は、2011 年に初めて報告された^[1]。ペロブスカイト型構造材料のような従来の強誘電体とは異なり、HfO₂ 基薄膜は 10 nm 以下の多結晶の極薄膜でも安定した強誘電性を示すため、強誘電体メモリへの応用に向けて広く研究されている。現在、La:HfO₂ 多結晶膜では(010)/(001)配向の割合が多いことで大きな分極値を示すことが指摘されている^[2]。しかし正方晶 PZT や AlN 基強誘電体のように、分極軸に単一配向したエピタキシャル膜を用いた電気的特性評価は検討されておらず、{100}配向したエピタキシャル膜の報告例は YSZ 基板上のみに限定されている^[3]。本研究では HfO₂ 基薄膜の配向制御方法について検討したので報告する。

【実験方法】(001)YSZ, (110)YAlO₃, (001)LaAlO₃, (001)SrTiO₃, (001)MgAl₂O₄ 基板上にパルスレーザー堆積法により 7%YO_{1.5} 添加した HfO₂ (以下 7YHO) 膜を作製した。成膜条件は、成膜圧力を 10 mTorr、酸素ガス流量を 5 cm³/min、レーザーパワーを 200 mJ、成膜温度を 700°C とした。得られた薄膜の結晶構造は X 線回折(XRD) θ -2 θ 測定、 2θ - ϕ 測定および極点測定により評価した。

【結果と考察】Figure 1 に各種基板上に作製した 7YHO 膜の{200}および{300}回折付近の XRD 測定結果を示す。なお、すべての膜が強誘電相を含む直方晶の単相のエピタキシャル膜であることを確認している。(001)YSZ 上では 7YHO 膜の{300}の回折と、{200}の回折のピーク位置から、直方晶の短軸(010)/(001)配向膜であることが分かる。これに対して、他の基板では、{300}の回折は確認できず、{200}の回折のピーク位置から、正方晶の長軸{(100)}配向膜であることが分かる。このことから、面内の格子定数が 7YHO の長軸にほぼ一致する(001)YSZ 基板以外では、分極軸が面内に配向した長軸(100)配向膜となることがわかり、分極軸配向膜の作製には基板の格子整合が重要なことが明らかになった。

【参考文献】[1] T. S. Böске *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 102903 (2011). [2] T. Schenk *et al.*, *Adv. Electron. Mater.* **5**, 1900303 (2019). [3] K. Katayama *et al.*, *J. Appl. Phys.* **119**, 134101 (2016).

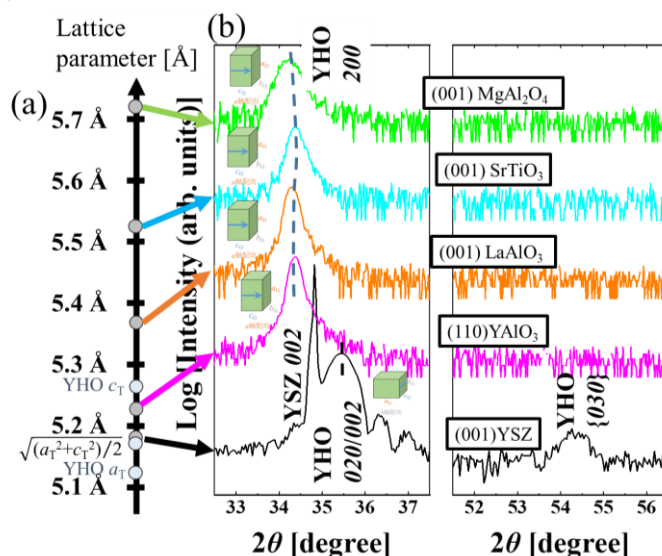


Fig. 1 (a) Lattice parameters of substrates.

(b) XRD θ -2 θ profiles for 7YHO films deposited on various substrates.

HfO₂-CeO₂ 膜における電気特性の膜厚及び組成依存性

Thickness and composition dependence of electrical property in HfO₂-CeO₂ film

東工大¹, 熊本大², TDK 株式会社³ 平井浩司¹, ◯岡本一輝¹, 白石貴久^{1,2}, 山岡和希子³,
鶴丸理沙子³, 井上ゆか梨³, 舟窪浩¹

Tokyo Tech.¹, Kumamoto Univ.², TDK Corp³

K. Hirai¹, ◯K. Okamoto¹, T. Shiraishi^{1,2}, W. Yamaoka³, R. Tsurumaru³, Y. Inoue³, H. Funakubo¹

E-mail: okamoto.k.ar@m.titech.ac.jp

【緒言】 HfO₂ 基蛍石型強誘電体は、これまで広く用いられてきたペロブスカイト型強誘電体酸化物とは異なり、厚み数 nm の極薄膜でも強誘電性を示すことが明らかにされてきた。加えて CMOS(Complementary Metal Oxide Semiconductor)プロセスとの整合性に優れている点からも、ナノスケール強誘電体メモリへの応用に適した材料として注目されている。これまで本研究グループでは、蛍石型構造を有する CeO₂^[1] と HfO₂ との固溶体薄膜を作製し、準安定な直方晶相の強誘電性について、その膜厚及び組成依存性について調査してきた。HfO₂-CeO₂ では膜厚 500 nm でも強誘電特性を示すことが明らかになり、HfO₂-ZrO₂ 薄膜のように約 30 nm 以下でのみ強誘電相が安定化する材料とは異なり、より膜厚が必要となる圧電材料としての応用が期待できる。

これまで本研究グループでは、蛍石型構造を有する CeO₂^[1] と HfO₂ との固溶体薄膜の膜厚及び組成依存性に対する電気特性・圧電特性評価を行ったので報告する。

【実験】 (1-x)HfO₂-xCeO₂ (CHO)を(111)ITO/(111)YSZ 基板上にパルスレーザー堆積法を用いて室温で堆積した後、窒素雰囲気下、1000°C で 10 s から 10 min の時間のアニール処理を行った。これより得られた膜の結晶構造を X 線回折により評価した。また、作製した膜の強誘電特性及び圧電特性は、それぞれ強誘電テスタ及びレーザー干渉計を用いて評価を行った。

【結果と考察】 アニール処理後において、膜厚 500 nm, 0.85HfO₂-0.15CeO₂ の CHO 膜は単斜晶相と直方晶相、同じ膜厚の 0.82HfO₂-0.18CeO₂ 膜は正方晶相を有することが X 線回折による結晶構造解析で明らかになった。Figure 1 にこれら CHO 膜の強誘電性及び圧電性測定結果を示す。どちらの膜も強誘電性に由来する P-E ヒステリシスループが得られている。0.82HfO₂-0.18CeO₂ の CHO 膜では、先行研究で報告されているような測定時の電界印加により正方晶相から強誘電相である直方晶相への構造相転移したことが示唆される^[2]。さらに、0.85HfO₂-0.15CeO₂ 膜と 0.82HfO₂-0.18CeO₂ 膜とでは残留分極値は大きく変わらないものの、0.82HfO₂-0.18CeO₂ 膜でより大きな圧電応答が現れることが明らかになった。

【謝辞】 本研究の一部は、科研費 (19H00758、21H01617、22K18307、23K13364)、文部科学省次世代 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。

【参考文献】 [1] H. Fujimori *et al.*, *Phys. Rev. B* **64**, 134104 (2001). [2] T. Shimizu *et al.*, *Phys. Status Solidi-R*, 2000589 (2021).

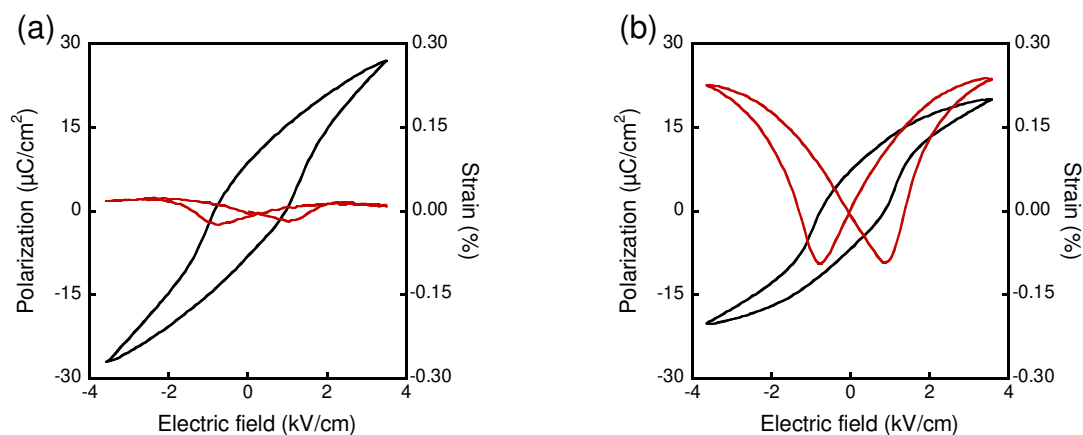


Fig.1 Ferroelectric and piezoelectric properties of (1-x)HfO₂-xCeO₂ films with (a) x=0.15 and (b) x=0.18.

Ga₂O₃ 基板上に作製した Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ 薄膜の強誘電性の評価

Evaluation of ferroelectricity for Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ thin films on Ga₂O₃ substrate

大阪公立大工¹, 大阪府立大工² °内藤 圭吾¹, 山口 晃一², 吉村 武¹, 藤村 紀文¹

Osaka Metro. Univ.¹, Osaka Pref. Univ.², °K. Naito¹, K. Yamaguchi², T. Yoshimura¹, N. Fujimura¹

E-mail: fujim@omu.ac.jp

【はじめに】近年、Hf系強誘電体を用いた FeFET に関する研究が盛んに行われているが、強誘電体薄膜/半導体界面に形成される低誘電率層に起因した減分極電界が FeFET の実用化における大きな障害となっている [1]。本研究では、酸化物半導体を用いることによる、界面層形成の抑制効果について検討を行っている。酸化物半導体である Ga₂O₃ は、ワイドバンドギャップ半導体であり、パワーデバイスへの応用が期待されているものの [2]、Ga₂O₃ 基板直上に成長した Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ (HZO) 薄膜の強誘電性については報告例がない。前回の応用物理学会では、(-201), (010) β-Ga₂O₃ 基板上に ALD 成長した HZO 薄膜の直方晶相形成過程について報告した [3]。本講演では、その誘電特性について詳細な議論を行う。

【実験方法と結果】 HZO 薄膜は、(-201) β-Ga₂O₃ 基板上に原子層堆積法 (ALD) 法を用いて作製した。その後、Pt 上部電極を RF マグネトロンスパッタリング法により作製し、600 °C で 30 秒間の結晶化アニールを施した。この試料に対して、±6.6 V の印加電圧、100 msec. のパルス幅で電圧印加をした際の PUND (Positive-up-negative-down) 測定の結果を Figure 1 (a) に示す。PUND 測定とは、正バイアス・負バイアスを二連続で試料に印加することで、リーク成分を除去して残留分極量を評価することのできる手法である。1 つ目の正バイアスの印加によって、分極は上部電極の方を向く。その後、2 つ目の正バイアスを印加することによって生じる分極量の差 (Fig. 1 (a) 中の Leak) がリーク成分となる。更に、2 つの負バイアスの印加時、つまり、Ga₂O₃ 基板の空乏・反転側では、HZO の分極反転が確認できず、分極量の減少を確認することはできない。この時の残留分極値の変化を評価するために、Estimated Polarization (P_{EST.}) を図中に示すように定義した。Fig. 1 (a) に示すように印加パルス幅 100 msec. の場合、P_{EST.} = 8.0 μC/cm² となる。この評価方法の妥当性を調べるため、印加電圧のパルス幅変化に伴う P_{EST.} の変化について実験を行った。その結果を Fig. 1 (b) に示す。パルス幅の増加に伴い、P_{EST.} は大きく減少し、印加電圧のパルス幅の増加に従ってリーク成分の影響が増加すると考えられる。また、パルス幅の減少に伴い、P_{EST.} は飽和することから、強誘電性由来の成分であることが示唆される。当日は、PUND 測定の電圧依存性等を加え、Ga₂O₃ 基板上に成長した HZO 薄膜の強誘電性に関して詳細に議論する。

【謝辞】 本研究は、総務省「ICT 重点技術の研究開発プロジェクト (JPMI00316)」によって実施した成果を含みます。

【参考文献】

- [1] E. Yurchuk, et al., IEEE IRPS, 2E.5.1 (2014).
 [2] J. Green, et al., APL Mater., **10**, 029201 (2022).
 [3] 内藤ら, 第 70 回春季応物, 17p-PA06-9 (2023).

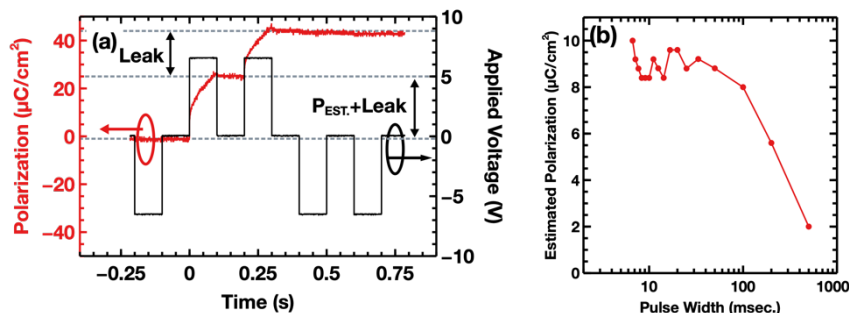


Fig. 1 (a) PUND measurement of Pt/HZO/Ga₂O₃/In MFS structure (b) Estimated polarization evaluation with changing the pulse width.

非加熱プロセスによる (Hf, Zr)O₂ 薄膜を用いた 強誘電体薄膜トランジスタの作製

Fabrication of ferroelectric thin film transistors with (Hf,Zr)O₂ films by non-heating process

兵庫県立大工 ○(M1) 飛鳥 剛士, 藤沢 浩訓, 中嶋 誠二

Univ. Hyogo, Takeshi Asuka, Hironori Fujisawa, and Seiji Nakashima

E-mail: ei23a002@guh.u-hyogo.ac.jp

【序論】 HfO₂系強誘電体は 10 nm 以下の膜厚でも強誘電性を示すりとともに、バンドギャップが大きいことから、可視光領域で透明性が高い。また、Y を 7% ドープした HfO₂ 強誘電体(YHO)では、熱処理によらない結晶化²⁾が報告されており、耐熱性の低い樹脂基板上への透明強誘電体デバイス応用が期待される。我々は、上部電極堆積による応力印加を利用し、熱処理によらず、(Hf, Zr)O₂ (HZO)薄膜の結晶化が可能なことを報告した。本研究では、非加熱プロセスによる HZO 薄膜の強誘電体薄膜トランジスタへの応用について報告する。

【実験】 SiO₂/Si 基板上にゲート電極として膜厚 30 nm のアモルファス ITO 薄膜を、その上に膜厚 25 nm の HZO 薄膜を成膜した。HZO 薄膜上に膜厚 10 nm の ITO チャンネルと膜厚 70 nm の ITO ソース/ドレイン電極 (200×150 μm²) を作製し、Fig. 1 のような構造の透明強誘電体薄膜トランジスタ(TFT)を作製した。薄膜は全てスパッタ法により非加熱で成膜した。HZO 薄膜は Hf/Zr 金属ターゲットと酸素を用いた反応性スパッタにより作製した(Hf: Zr = 1: 1)。また、チャンネルおよびソース/ドレイン電極は、フォトリソグラフィおよびリフトオフプロセスによってパターンニングした。TFT は、 I_D - V_G 特性、リテンション特性、高速応答特性などを評価した。

【結果と考察】 ITO チャンネルと ITO ボトムゲート間で D-E 特性を測定したところ、 $2P_r = 8 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 、 $2E_c = 1.5 \text{ MV}/\text{cm}$ のヒステリシスループが得られた。ただし、リーク電流が大きかったため、1 μs のゲート電圧パルス印加して、 I_D - V_G 特性を測定した (Fig.2)。ITO チャンネルは *n* 型伝導を示し、上向きと下向きの分極に対応して、on/off 状態が得られた。on/off 比がおおよそ 10 の反時計回りのヒステリシスループが得られ、HZO の強誘電分極によってチャンネルコンダクタンスが変調されたことが示された。on 電流は約 25 μA で、チャンネルの寸法と ITO の抵抗率 $586 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ から計算される 80 μA と近い値を示した。off 電流が 1 μA と大きいのは、分極が $4 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ と小さく ITO チャンネル内のキャリアを空乏させるには十分ではないためである。また、 I_D - V_G 特性のゲート電圧のパルス幅依存性では、パルス幅 1 ms から 1 μs まで、同程度の on/off 比が得られた。リテンション特性では、おおよそ 10⁵ s までの不揮発動作が確認できた。当日は、チャンネルの膜厚が異なる TFT の特性も報告する。

【参考文献】

- 1) J. Müller et al, Appl. Phys. Lett. 99, 112901-2 (2011).
- 2) T. Mimura et al, Appl. Phys. Lett. 116, 062901 (2020).

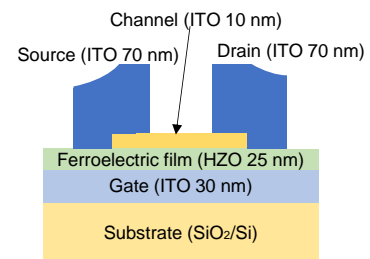


Fig1 Structure of ferroelectric TFT

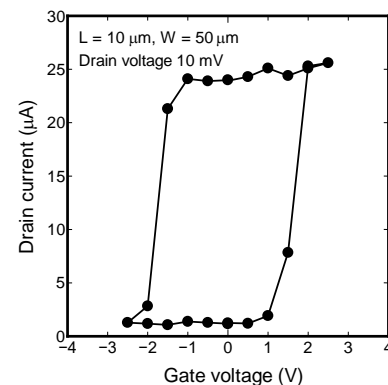


Fig.2 I_D - V_G curve of the ferroelectric thin-film transistor. Channel length and width are 10 and 50 μm, respectively.

HfO₂系強誘電体膜の絶縁破壊箇所の電子状態: レーザー励起光電子顕微鏡

Electronic structure of the breakdown area in a HfO₂-based ferroelectric film:

Laser-based photoemission electron microscopy

東大物性研¹, 東大生産研², 東大 d.lab³, 東大新領域⁴, 東大 MIRC⁵, 東大特別教授室⁶

○藤原弘和¹, 糸矢祐喜², 小林正治^{2,3}, Cédric Bareille^{4,5}, 辛埴^{5,6}, 谷内敏之^{4,5}

The University of Tokyo, Hirokazu Fujiwara, Yuki Itoya, Masaharu Kobayashi, Cédric Bareille,

Shik Shin, and Toshiyuki Taniuchi

E-mail: hfujiwara@issp.u-tokyo.ac.jp

Zr:HfO₂ (HZO) は 400 °C 以下の低い結晶化アニール温度で強誘電性を示すため、BEOL プロセス互換の強誘電体メモリデバイスへの応用が期待される [1]。HZO を用いた典型的な強誘電体キャパシタでは、分極反転を繰り返すと残留分極の増加および減少を経て、絶縁破壊 (Dielectric Breakdown: DB) を起こす [2]。一度 DB が起こると分極反転が困難になる。DB の発生機構を解明することで、強誘電体メモリデバイスのより高い耐久性に繋がることを期待される。

レーザー励起光電子顕微鏡 (laser-PEEM) は、物質の仕事関数と同程度の光子エネルギーを持つ励起光を利用することで、表面から 50 nm 以上の深さの電子状態分布を観察可能な顕微イメージング手法である [3]。これまでに、HfO₂ 系強誘電体の DB 箇所の可視化がなされてきた。これまで用いてきた励起光エネルギーは 4.66 eV であり、物質の典型的な仕事関数と同程度だったため、DB 箇所のフェルミ準位 (E_F) 近傍の限られた電子状態しか観測することができなかった [4]。

本研究では、より高い励起光エネルギー 5.82 eV の連続波レーザーを用いて、TiN/HZO/TiN キャパシタの DB 箇所の電子状態解析を行った。Fig. 1(a) に、*in-situ* で取得した分極 P およびリーク電流 I_{leak} のサイクリング特性を示す。5 × 10⁷ サイクルから 7 × 10⁷ サイクルの間で DB が観測された。DB 前後で取得した PEEM 像の差分 (Fig. 1(b)) から、キャパシタ中央付近で DB 箇所が観測された。 $h\nu = 5.82$ eV の励起光を用いて DB 箇所内 (Pos.1) と外 (Pos.2) で取得した光電子スペクトルから、DB 箇所では 1 eV 以上のエネルギー領域に渡って光電子強度が増大していることを解明した。これは、DB 箇所で作られた欠陥状態は 1 eV 以上の幅を持つことを示唆している。本成果は、 $h\nu = 5.82$ eV の連続波レーザーを用いたことで達成されたものであり、高エネルギー連続波レーザーと PEEM の組み合わせが、デバイスの非破壊分析に有用であることを示している。

References: [1] S. J. Kim *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 172902 (2018). [2] M. Pešić *et al.*, Adv. Funct. Mater. **26**, 4601 (2016). [3] Y. Okuda *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, SGGB02 (2020). [4] 藤原弘和, 第 83 回応用物理学会秋季学術講演会, 22p-A307-15.

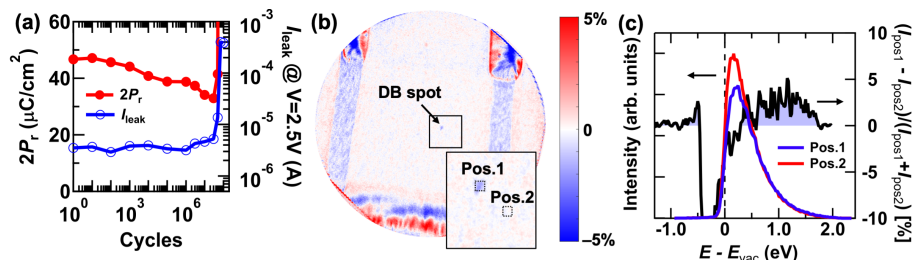


Fig. 1: (a) Field-cycling characteristics of a 30 μm × 40 μm capacitor with 10-nm thick HZO observed. (b) Difference in PEEM images taken before and after DB. (c) Photoelectron spectra at Pos.1 (red, I_{pos1}) and Pos.2 (blue, I_{pos2}), and the difference spectrum obtained from $(I_{\text{pos1}} - I_{\text{pos2}}) / (I_{\text{pos1}} + I_{\text{pos2}})$.

Hf-Zr-O 強誘電体薄膜の分極ドメインの挙動解析

Analysis of Polarized Domain Behavior in Hf-Zr-O Ferroelectric Thin Films

産総研¹ ○右田 真司¹, 浅沼 周太郎¹, 森田 行則¹, 太田 裕之¹

AIST¹, °Shinji Migita¹, Shutaro Asanuma¹, Yukinori Morita¹, Hiroyuki Ota¹

E-mail: s-migita@aist.go.jp

【研究動機】 HfO₂ 系強誘電体は、Pb(Zr,Ti)O₃ (PZT)系に続く不揮発性メモリ用途の新材料として期待が高まっている。HfO₂系材料の直方晶で現れる強誘電性に加えて、対称性の高い結晶相で現れる反強誘電性さらには結晶相境界に起因した高誘電性といった機能にも関心が集まっている。これらの機能をうまく活用すれば、従来よりも大規模で高密度な FeRAM の実現や DRAM 用誘電体材料の代替など、将来の様々なメモリデバイスへの適用可能性が広がる。そのため現在 HfO₂系薄膜の特性をドーパント、膜厚効果、成膜手法やプロセス温度、電極界面処理、ラミネートや界面層の構造設計といった様々な側面から工夫して改善する研究が進められている。強誘電体材料の研究では自発分極量や書き換え耐性といった代表的な特性の向上に注目が集まる一方で、強誘電体薄膜の誘電応答を調べて分極ドメインの挙動を解析することも興味深い。PZT 系強誘電体ではキャパシタの C-V 特性を解析することで分極ドメイン壁の振る舞いが解析されている[1-3]。本研究では同様の手法を用いて Hf-Zr-O 強誘電体薄膜の分極ドメインの挙動解析を行なった。

【実験と結果】 MFM キャパシタは低抵抗 Si 基板の上にスパッタ法で堆積した TaN (10nm)/Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ (12 nm)/TaN (10nm)積層膜を用いて作製した。上部 TaN 膜形成後に N₂ ガス中で 700°C、10 min の熱処理を行った。さらにアルミ電極膜を堆積した後にリソグラフィとドライエッチでパターン加工を行なった。キャパシタサイズは 100 μm x 100 μm である。P-V 測定は Premier II (Radiant Technologies Inc.)、C-V 測定は B1500A (Keysight)を用いて行なった。P-V 測定とその dP/dV 解析結果を Fig. 1 に示す。典型的な強誘電性ヒステリシスが観測され、電圧スイングに対する電荷量変化 dP/dV で求めた静電容量では抗電界付近で非常に大きな増大が現れている。同じキャパシタで続けて測定した C-V 特性を Fig. 2 に示す。測定回路の寄生成分の補正を行っていないため 500 kHz の測定データで若干の変化が生じているが、1 k~200 kHz での測定結果は、良い一致を示している。PZT 系での報告では小信号電圧の周波数を高くするにつれて静電容量値が減少する傾向が報告されていることに比較して、HfO₂系では安定した応答が観測されることが分かった。

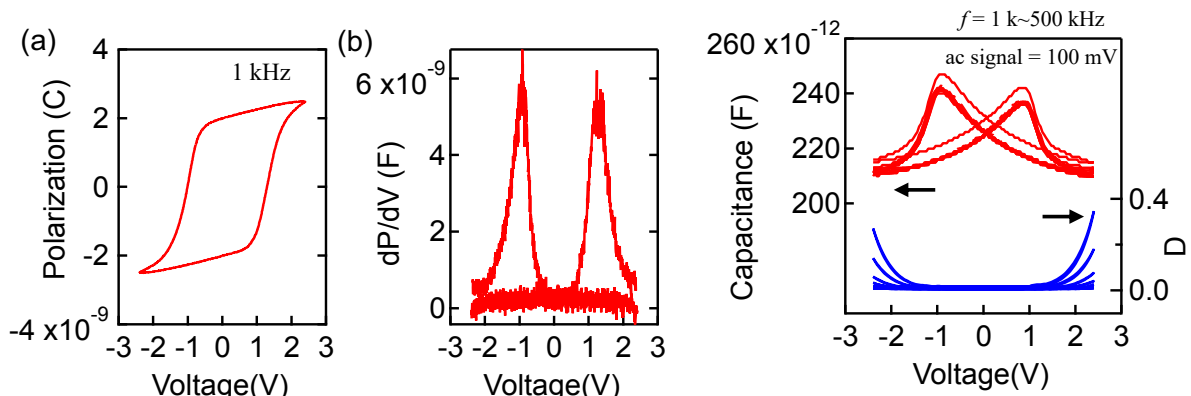


Fig. 1. (a) P-V character of 12-nm-thick Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ capacitor (S=10⁻⁴ cm²). (b) dP/dV plot calculated using the P-V curve.

Fig. 2. C-V and D-V characters of 12-nm-thick Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ capacitor (S=10⁻⁴ cm²). The ac signal level is 100 mV, and the frequencies are between 1 kHz and 500 kHz.

【まとめ】 小信号電圧を振動させて誘電応答を評価する C-V 測定では本来、不可逆的な分極反転の影響を排除した応答成分を抽出できるのだが、測定中に分極ドメイン壁の移動が生じるとこれが静電容量値の変化（減少）として現れる。PZT で報告されているこのような現象が見られないことは、HfO₂系強誘電体の分極ドメイン壁がロバストであることの傍証になると考えている。

参考文献 [1] D. Bolton *et al.*, *J. Appl. Phys.* **93**, 1735 (2003). [2] D.V. Taylor and D. Damjanovic, *J. Appl. Phys.* **82**, 1973 (1997). [3] O. Lohse *et al.*, *J. Appl. Phys.* **89**, 2332 (2001).

強誘電性 HfO₂ における E_C の膜厚依存性の特徴

Thickness dependence of E_C in ferroelectric HfO₂

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

強誘電体 HfO₂ の抗電界 E_C は PZT, BTO などの従来よく研究されてきた材料に比べて桁で大きいことが報告されている。また膜厚(d)依存性は, nucleation-limited switching モデルで従来報告されてきた d^{-2/3} 依存性からは大きくずれており, ほぼ膜厚によらない値が報告されている。HfO₂ に限らず E_C の膜厚依存性については従来から多くの議論があり, その意味で HfO₂ に関しても確定的なことはほとんどわかっていない。本講演では E_C の膜厚依存性についてこれまでどのような結果が報告されているかを考えることでプロセスや製法だけにとらわれない E_C の膜厚依存性の起源を議論したい。

2011 年の Si-doped HfO₂ の強誘電性の発見の報告[1]を含めて約 50 文献における E_C に関する結果を図1に示す。200 nm 以上の膜厚については東工大からの報告[2]以外にはないが, 厚膜領域では E_C は大きくは変わらない。一方で薄膜領域では違いが際立っている。ここで横軸を 1/d でプロットした結果を図2に示す。ここから大きくは2種類のグループ (A と B) に分けられることが明瞭に見てとれる。グループ A はおおよそ次のように表すことができる。

$$E_C = E_C^0 \left(1 + \frac{d_0}{d}\right).$$

グループ B は膜厚によらずほぼ一定の値を示す。もちろん詳細に見ればその中で差があるという批判は受け入れるとしてもグループ A に比べたらかなり変化は小さい。ここで図1, 2における yellow (open) symbol はエピ成長した膜として報告されている結果である点に注目する。エピ成長した膜においては下部電極に導電性酸化物が用いられており, 界面層が図3(左)の模式図に示すようにエピ常誘電層になっていないかということも懸念される。しかし電極側における電位変化や界面層の非強誘電層化のようなキャパシティブな効果は depolarization field として働くため E_C の増加には効かないだろう。さらに界面層がレジスティブに機能しているとしても P-V 測定で観測される E_C の場合にはこれほど大きい影響は現れないと思われる。

エピ強誘電性 HfO₂ 膜といっても界面応力による orthorhombic 相の安定化は難しく, また熱力学的な表面エネルギーという観点からの安定化も難しいと思われる[3]。また図1, 2では 5 nm 以上の膜厚を対象に E_C をプロットしているのでリーク電流による印加電圧降下によるものとは考えにくい。そこで, エピ界面における比較的強い応力は “orthorhombic 相の安定化” ではなく図3(右)の模式図のように “orthorhombic 相強誘電性の強化” をしている, つまり界面応力によって強誘電性を特徴つける Landau 展開の2次の項が薄膜化とともに増大される結果として大きな E_C が観測されると考えられないだろうか。一方, 厚膜領域では界面応力が徐々に緩和され多結晶膜に近い E_C に近づいていく。グループ B の中のばらつきにもある程度の傾向が見られるがエピ膜ほど変化は著しくなく, もう少しシステムティックな評価・解析が必要だろう。

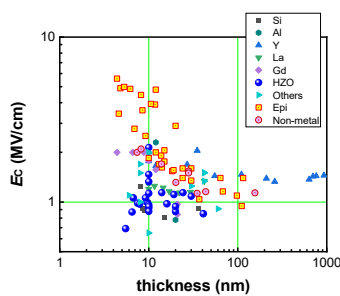


図1. E_C と膜厚 d 関係

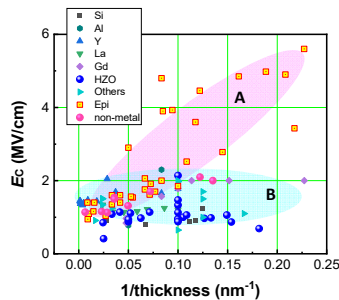
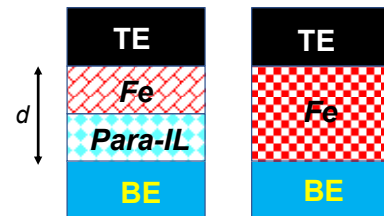


図2. E_C と膜厚の逆数(1/d)との関係



3. エピ膜で予想される界面模式図

[1] APL 99, 102903 (2011). [2] APL 115, 032901 (2019). [3] JAP 117, 134109 (2015).

強誘電性 HfO₂ の分極反転機構

Polarization reversal kinetics in ferroelectric HfO₂

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

強誘電体の分極反転機構に関して、Landau モデルに基づく反転機構 (LS) では抗電界 E_c が現実的な値と桁で一致しないことからドメイン成長を軸にしたモデルが 1950 年代から活発に議論されてきた。大きくは KAI モデル[1]と NLS モデル[2,3], それに膜内のばらつきなどを取り入れた統計モデル[4]に分けられるであろう。HfO₂ の場合には NLS モデルが適用されることが多いが、その構造的起源である orthorhombic 相ユニットセル間の分極の相互作用は大変弱くユニットセルレベルでの分極反転が可能ではないかというモデルが最近報告されている[5]。我々は当初より HfO₂ の E_c が LS に近い程度に高いことに注目してきたが、これらの状況を考慮して HfO₂ の分極反転モデルを議論する。

KAI モデル[1], NLS モデル[2]のいずれにおいてもキーとなるのはドメイン間の相互作用である。分極が一方向を向いた強誘電体に逆向き電界を加えた場合、何らかの理由で電界方向に分極したドメインが形成されると隣り合うドメインは上記相互作用の助けを借りて容易に分極反転を引き起こすことが出発点になる。一方, [3]で議論される NLS モデルにおいては強誘電体全体をいくつかのセグメントに分けてそれぞれのセグメントの分極反転は確率的に起こると仮定して膜全体としてはセグメント反転の統計的な総和として表されるとする。

HfO₂ の分極のユニットセルは図 1 のように表される。セル内でイオン変位のない領域がスパーサーとして働き隣り合うイオン変位による分極が独立に起こる (あるいは相互作用は大変小さい) ことが予想される。つまり図 2 に示すように単一ユニットセルにおける分極反転がセグメントの分極反転を引き起こすとみることができる。

[3]ではセグメント内で分極反転が厚さ方向にどのように進んでいくかは議論されていないが、ここでは次のように考える。膜内でもっとも E_c の低いセルが先ず分極反転すると膜厚方向に他のセルの分極反転を促すように depolarization field が働く。それによってセルの分極反転は次々と膜厚方向に伝播する。つまり横方向の domain-domain 相互作用は弱い、セルレベルでの depolarization 効果が positive feedback 的に膜厚方向に分極反転を促すことでセグメントの反転が完了する (図 3)。その場合、相互作用の無いセル内における分極反転は LS で記述されると考えるのは自然であろう。以上のように考えると強誘電性 HfO₂ の分極反転は、膜全体としてはいわゆる Tagantsev モデル[3]で記述され、それぞれのセグメントにおける分極反転はユニットセルにおける分極反転の膜厚方向への連鎖で起き、それぞれのセルの分極反転は LS で記述される、と考えるのはもっともらしいのではないだろうか。結果として HfO₂ の E_c の振る舞いは他の強誘電体と異なり膜厚依存性が大変小さいものになっていると考えられる。

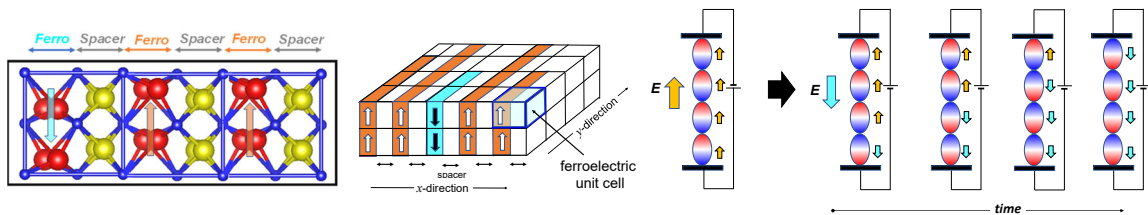


図 1

図 2

図 3

[1] Ferroelectrics, 104, 299 (1990). [2] JAP, 28, 227 (1957). [3] PRB. 66, 214109, (2002). [4] JAP. 108, 014106 (2010). [5] Science 369, 1343 (2020).

Influence of Electric Field during Holding Time on Imprint Characteristics in $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ MFM Capacitors

^oZ. Liu, K. Toprasertpong, M. Takenaka, and S. Takagi

The University of Tokyo, Faculty of Engineering.

E-mail: liuzh@mosfet.t.u-tokyo.ac.jp

1. Background: Hafnia-based ferroelectrics have strongly revitalized the field of ferroelectric memory, because of the superior ferroelectric properties in thin films and high compatibility with the Si CMOS platform [1, 2]. However, reliability issues such as wake-up, fatigue, and imprint need to be satisfactorily resolved for actual applications [3]. Among them, the imprint effect is an important issue because it could cause serious retention or write failure problems [1]. Here, many models such as charge injection [4], charge movement [5], and oxygen vacancy diffusion [6] have been proposed as the physical origin of imprint. In this work, we applied an additional electric field (E_h) to HZO MFM capacitors during holding time and obtained evidence that charge injection/de-trapping near the MF interface can take an important role in imprint.

2. Experiment: Al/TiN/HZO/TiN/Si/Al MFM capacitors using 10-nm-thick $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ were used in this work. Fig. 1 schematically shows the pulse train sequence we employed. Fig. 2 shows a typical imprint behavior. Here, the amount of imprint was evaluated by the difference of coercive electric field (E_c) in P-E curves before and after the hold term. We applied E_h during this hold term and evaluated its influence on imprint experimentally.

3. Results and Discussion: Fig. 2 and 3 show a typical imprint characteristic under the condition of $E_h = 0$ MV/cm. Here, the positive write pulse with 4 MV/cm was applied to the capacitors. The amount of imprint increases over time, which is consistent with many other reported results [4-6]. The result also shows that ΔE_{c-} is much larger than ΔE_{c+} . In the present analyze, we use ΔE_{c-} and ΔE_{c+} for the positive and negative write conditions, respectively. Fig. 4(a) shows the relationship between E_h and ΔE_{c-} after the positive write pulse. We can find that the imprint becomes larger with an increase in E_h from -0.4 MV/cm to 1.5 MV/cm. This increase is pronounced under longer holding time. A similar phenomenon is also observed for negative write and negative E_h , as seen in Fig. 4(b).

The imprint can be caused by charge generation near the MF interfaces. Here, there are two models of charge generation, the charge movement model and the charge injection/de-trapping model. As shown in Fig. 5(a), the charge movement model assumes that charges inside the FE layer move inside the FE layer by the depolarization field (E_d) [5]. On the other hand, the charge injection model assumes that charges are generated around an interfacial layer between the electrode and the FE layer by an electric field (E_i) due to incomplete screening in the interfacial layer [6], as shown in Fig. 5(b). Both charge injection and charge movement, leading to charge accumulation near the MF interface, as seen in Fig. 5(c)[5], can result in domain pinning or an additional electric field inside the ferroelectric, which can be the physical origin of the imprint. Thus, the application of an additional E_h during the holding term can enhance charge injection and weaken charge movement or vice versa, as seen in Fig. 5(d), because E_i and E_d are in the opposite direction. Then, the results of Fig. 4(a) show that application of positive E_h , which can enhance charge injection under the positive write condition, increases the imprint. As a result, we can conclude that the charge injection takes a more important role in the imprint observed in the HZO MFM capacitors. The charge de-trapping near the opposite electrode also

has similar conclusion.

4. Conclusion: We have found from the experiments of the imprint of HZO MFM capacitors that positive E_h can enhance the imprint, which can be evidence that the charge injection/de-trapping at MF interfaces plays an important role in the imprint.

Acknowledgments: This work was supported by JST-CREST (JPMJCR20C3) and JSPS Kakenhi (21H01359).

References: [1] H. Chen *et al.*, Appl. Phys. Rev. 9, 011307 (2022). [2] J. Müller *et al.*, IEDM Tech. Dig., 10.8.1 (2013). [3] K. Toprasertpong *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces 14, 51137 (2022) [4] P. Yuan *et al.*, Nano Res. 15, 3667 (2022). [5] P. Buragohain *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces 11, 35115 (2019) [6] F. P. G. Fengler *et al.*, J. Appl. Phys. 123, 204101 (2018)

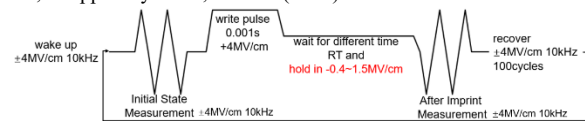


Figure 1: Pulse train sequence used for measurements

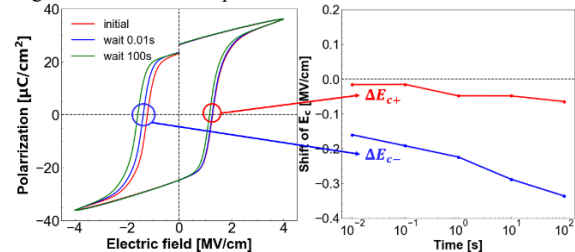


Figure 2: P-E curves before and after holding term with $E_h = 0$ MV/cm.

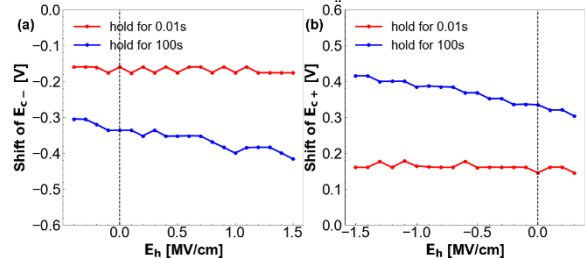


Figure 4: (a) ΔE_{c-} for positive writing and (b) ΔE_{c+} for negative writing as a function of E_h with the holding time of 0.01s (red) and 100s (blue)

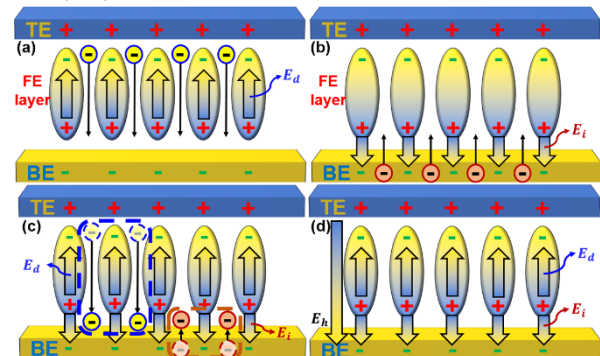


Figure 5: (a) the charge movement model. (b) the charge injection model. (c) Both charge movement (blue) and charge injection (brown) result in fixed charge generation near the back electrode. (d) positive E_h can enhance the charge injection and weaken the depolarization field under the positive voltage write.

HfO₂/SiO₂ 界面電荷量制御による HfO₂-FeFET の低電圧ディスタート抑制

Disturb-free operation of HfO₂-FeFET by controlling the HfO₂/SiO₂ interfacial charges

キオクシア(株) [○]浜井貴将, 鈴木都文, 市原玲華, 吉村瑠子, 佐久間究, 松尾和展, 藤井章輔, 齋藤真澄
Kioxia Corp., [○]Takamasa Hamai, Kunifumi Suzuki, Reika Ichihara, Yoko Yoshimura,
Kiwamu Sakuma, Kazuhiro Matsuo, Shosuke Fujii, and Masumi Saitoh

E-mail: takamasa1.hamai@kioxia.com

近年、強誘電体 HfO₂ を用いた電界効果トランジスタ(HfO₂-FeFET)が次世代不揮発メモリの一種として注目を集めている。これまでの研究で、強誘電体膜の分極反転動作と同時に HfO₂/SiO₂ 界面に大量の電荷がトラップされ、デバイス性能に大きく影響することが知られている[1]。我々は以前、この界面トラップ電荷が安定な成分と不安定な成分の2つに分類可能なことを見出した(Fig. 1)[2]。このうち不安定なトラップ成分は HfO₂ 膜に加わる電界を強めるため、分極反転ダイナミクスを変調する可能性がある。一方、メモリエルをアレイ化するには集積度向上のためにセル間でワード線やビット線を共有するため、選択セルへの書込み動作時に片方の配線を共有する半選択セルに低電圧のストレスが不可避に印加される。この低電圧ストレスによる電界が不安定なトラップ電荷により強まることで、半選択セルでの意図しない分極反転(低電圧ディスタート)が生じやすくなる懸念がある。そこで本研究では、HfO₂/SiO₂ 界面における不安定なトラップ電荷が分極反転ダイナミクスに及ぼす影響を詳細に調査し、低電圧ディスタートを抑制するアレイ動作方法を提案する[3]。

Fig. 2 に、ゲート電極に正の低電圧ストレスを印加した際の界面トラップ電荷の充放電を(a)充電中の I_d 変調、(b)ゲート電極への放電電流としてとらえた結果を示す。充電中の I_d の減少は電荷トラップ(V_{th} 正シフト)、増加は分極反転(V_{th} 負シフト)に由来する。書込み動作において半選択セルが受けるような低電圧のストレスに対して、電荷トラップやデトラップは約 10 μ s で進行することが確認された。低電圧ストレスによる分極反転(ディスタート)には 1 ms 程度を要するため、高速に充放電される HfO₂/SiO₂ 界面のトラップ電荷が形成する電界が、その後の分極反転ダイナミクスを変調しうることを示唆された。そこで低電圧ストレスを電圧 0 V のインターバルで分割して界面トラップ電荷の放電を促進することにより、強誘電体 HfO₂ 膜に印加される電界を低減し、ディスタート特性を改善することを試みた。Fig. 3 にインターバル導入による分極反転ダイナミクスの変調効果、消去状態に対する書込み方向のストレスによる V_{th} 変化としてまとめた。Fig. 3 (a)にはインターバルを 100 μ s に固定し、パルス幅を変えた評価、(b)にはパルス幅を 1 μ s に固定し、インターバルを変えた評価の結果を示す。ストレス 1 回あたりのパルス幅を短く、インターバルを長くすることで、低電圧ストレスによる分極反転、すなわち低電圧ディスタートを狙い通り強く抑制できることが判明した。特にパルス幅 1 μ s、インターバル 100 μ s のシーケンスでは合計印加パルス幅(T_{sum} 、すなわち印加 T_{pulse} の和)が 1 sec まで、つまり 10⁶ 回の書込動作に対してディスタートフリーな動作が実現できており、標準条件に対して T_{sum} を基準として 4 桁以上改善している。以上のように、HfO₂-FeFET のメモリ素子としての信頼性確保のためには、HfO₂/SiO₂ 界面への揮発的な電荷トラップ・デトラップの制御が重要である。

[1] E. Yurchuk, *et al.*, *IEEE IRPS*, 2E.5 (2014). [2] R. Ichihara, *et al.*, *IEEE VLSI*, TF1.2 (2020). [3] T. Hamai, *et al.*, *IEEE IRPS*, A6.4 (2023).

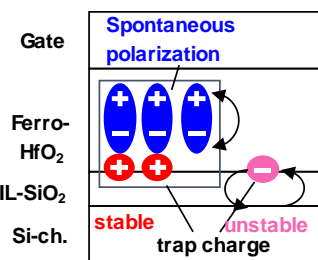


Fig. 1 Schematic of the spontaneous polarization and interfacial trap charges in the FeFET [3]. ©IEEE 2023

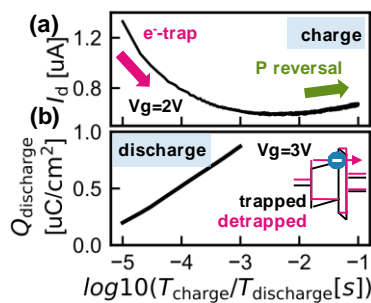


Fig. 2 (a) Charging during disturb stress and (b) discharging after disturb stress [3]. ©IEEE 2023

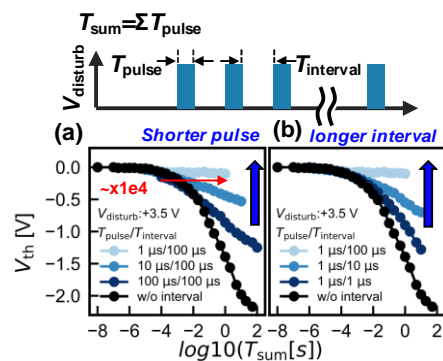


Fig. 3 Program disturb suppression. (a) Pulse width dependence at $T_{interval} = 100 \mu$ s and (b) interval dependence at $T_{pulse} = 1 \mu$ s [3]. ©IEEE 2023

HZO-FeFET における読み出し動作の積算が分極状態に与える影響

Effect of Accumulated Read Operation on Polarization State in HZO-FeFET

東大院工 ○大友 将樹, トプρασертпонг がディット, 竹中 充, 高木 信一

○M. Otomo, K. Toprasertpong, M. Takenaka, S. Takagi (Univ. Tokyo, School of Engineering)

E-mail: otomo@mosfet.t.u-tokyo.ac.jp

【背景】 $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ (HZO) を用いた強誘電体 FET (FeFET) は、不揮発性・高速ゆえに次世代メモリとして注目されているが、実用化する上で、読み出し動作に伴い特性が変化する Read disturb [1] を考慮する必要がある。FeFET では読み出し時にゲートに電圧パルス（ V_r , t_r ）を印加するが、Read disturb を見積もる上で、一回の読み出しだけではなく複数回の読み出しによる影響も重要となる。書き込み動作を想定した高電圧・短時間パルスの積算効果の報告例 [2] はあるものの、読み出し動作を想定した低電圧・長時間での報告例は少ない。本研究では、HZO-FeFET に低電圧のゲートパルスを繰り返し印加した際に、低電圧印加の積算が分極状態に与える影響を調査したので報告する。

【実験手法】 測定概要を Fig. 1 (a) に示す。ゲートに読み出しを想定した低電圧パルス（ V_r , t_r ）を t_h のインターバルで複数回印加し、前後で Fig. 1 (b) に示すような電流・分極状態の測定を行った。電流に関しては I_g - V_g 特性を用いて閾値電圧に換算し、分極状態に関しては Fig. 1 (c) に示すような、パルス印加により反転した分極量の割合（ ΔP ）を算出した。Fig. 2 (a) に示す HZO-nFeFET を作製し測定に用いており、Fig. 2 (b) の I_d - V_g 特性に示すように 2 V 程度の Memory window (MW) が得られた。作製した FeFET の分極スイッチング特性は Fig. 2 (c) となることから、ゲート電圧の中心（ V_0 ）を 1 V と定めた。

【結果・考察】 High- V_{th} 状態で読み出し電圧（ V_r ）を 1.5 V とした際の ΔP のパルス幅（ t_r ）依存性を Fig. 3 (a) に示す。本結果では、インターバル時間とパルス印加時間を同一（ $t_h = t_r$ ）とした上で、総パルス印加時間（ Σt_r ）を各条件で揃えた（100 s）。 ΔP が単一パルスによる影響の単純な足し算で見積もられるのであれば、 Σt_r が揃っていることから、各パルスの t_r に依存しないと考えられるが、 t_r 増加に伴って ΔP は増加した。これは HZO-FeFET において、低電圧印加の影響が単純な積算で記述できず、長パルスほど影響が大きいことを示唆している。また、同条件における閾値電圧シフト量（ ΔV_{th} ）の t_r 依存性を Fig. 3 (b) に示しており（但し、 Σt_r (100s) を単一パ

ルスとして印加した場合の閾値電圧シフト量（ ΔV_{th0} ）を 0 とした）、 t_r によって ΔV_{th} が 0.2 V 程度変化した。MW が 2.0 V 程度であることと、分極反転の割合 ΔP が t_r によって 0.1 程度変化していることと合わせて考えると、分極状態の違いが FeFET の閾値電圧に反映されており、実際の読み出しに影響を与えたと考えられる。

【結論】 HZO-FeFET において、低電圧パルスの連続的な印加による影響は完全には積算されず、長時間印加し続けた場合と異なる分極状態になることが明らかとなった。

【謝辞】 本研究は JST-CREST (JPMJCR20C3) 及び科研費 (21H01359) の支援により実施した。

【参考文献】 [1] S. Yoshikiyo et al., IMW, 2022. [2] H. Mulaosmanovic et al., T-ED, 67, 2020.

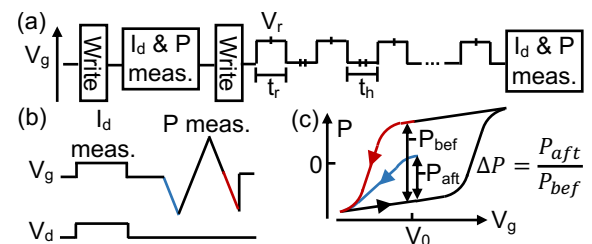


Fig. 1 : Measurement (a) overview and (b) in I_d and P parts, and (c) evaluation method of polarization

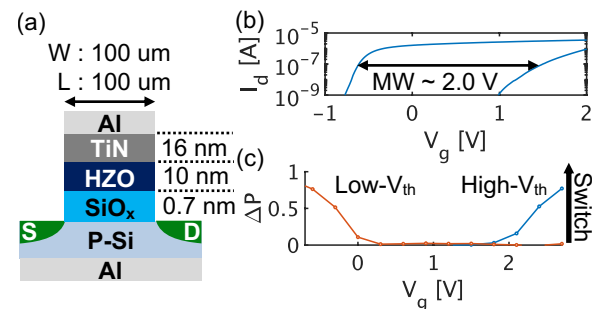


Fig. 2 : (a) Structure, (b) I_d - V_g and (c) switching characteristics of HZO-FeFET

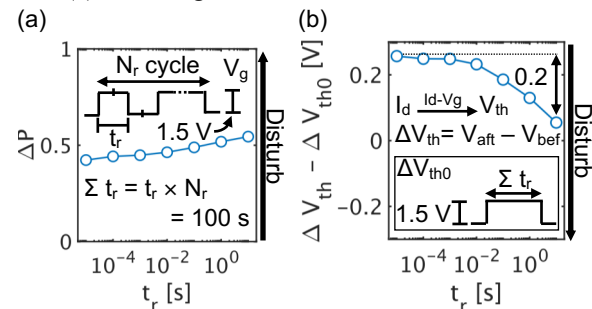


Fig. 3 : t_r dependence of (a) ΔP and (b) ΔV

Impact of HZO Scaling in FeFET on the electrical characteristics

⁰Z. Cai, ¹K. Toprasertpong, ¹M. Takenaka, and ¹S. Takagi

¹The University of Tokyo, Faculty of Engineering.

E-mail: zuocheng.c@mosfet.t.u-tokyo.ac.jp

1. Introduction

A HZO-based FeFET has been recognized as a promising candidate for non-volatile memory, logic, and AI accelerator [1,2]. However, several problems including high-voltage operation [3,4] greatly impede their applications. In MFM capacitors for FeRAM, HZO thickness scaling has been proven to be an efficient approach for reducing voltage [5]. Although there is a report on HZO scaling in p-FeFET [6], systematic studies regarding the impact of HZO thickness scaling on FeFET memory characteristics are still lacking. In this work, we experimentally examine the memory characteristics of FeFETs with HZO thickness ranging from 11 to 4.6 nm with an emphasis on low-voltage operation, the I_{on}/I_{off} ratio and the $S.S.$ value.

2. Experiment

0.7-nm-thick SiO₂ layers were grown on p-type Si substrates by SC2. Then, HZO with thicknesses of 11, 8, 6, and 4.6 nm were formed by atomic layer deposition (ALD) using TEMAZ, TEMAH and H₂O at 300 °C with Hf/Zr ratio of 1:1. RTA was conducted in N₂ atmosphere under 450 °C for 30s to achieve enough ferroelectric properties and good interface qualities [5,7].

3. Results and Discussions

Fig. 1(a) shows the polarization as a function of HZO thickness under various operation voltage ranges, measured by shortening the source, drain, and substrate at 4kHz. Thinner HZO films provide smaller V_c [5], which is beneficial for low-voltage operation. In the low voltage range, FeFETs with thinner HZO show higher $2Pr$. The MWs (**Fig. 1(b)**) extracted from the DC I-V characteristics indicate that even in low V_g ranges of -0.5 V/ 2 V, FeFETs with 6- and 4.6-nm HZO have MW of 0.7 and 0.8 V, respectively, which are larger than those of 0.3 and 0.05 V in FeFETs with 11- and 8-nm HZO, respectively. When the V_g range decreases to -0.25 V/1.75 V, MW of FeFETs with 4.6-nm HZO can also show around 0.5 V, while there is almost no MW for 8- and 11-nm HZO. Also, when HZO is thicker than 8 nm, the maximum MW seems to saturate around 1.7-1.8 V. **Fig. 2** shows the comparison in MW evaluated from the fast I-V curves of FeFETs with the 4 different HZO thicknesses under pulse width of 1 μ s. The erasing/programming pulse (P/E) voltages are reduced from -2.4 V/ 3.2 V (11 nm) to -1.6 V/ 2.7 V (4.6 nm) under the operating voltage of 0.8 V. Also, the P/E voltage decreases from -2.3/ 3.15 V (11 nm) to -1.5/ 2.5 V (4.6 nm) under MW of 0.5 V.

Besides the low voltage operation, it is found that the thinner HZO FeFETs show smaller $S.S.$ values as shown in **Fig. 3(a)**. Under the high voltage range such as -1.5/3 V, FeFETs have similar $S.S.$ min values in the large voltage ranges, irrespective of the HZO thickness. However, when the voltage range decreases to -1/ 2.5 V and -0.5/ 2 V, the $S.S.$ min values, especially the backward ones for FeFETs with 8- and 11-nm HZO increase dramatically (more than 150 mV/dec), while the ones for 4.6- and 6-nm HZO almost remain the same. This is

attributable to higher polarization and higher capacitance in thinner HZO in the low voltage range.

Thanks to the smaller $S.S.$ value, when decreasing the HZO thickness, the I_{on}/I_{off} ratio shows 10 \times higher in FeFETs with 4.6-nm HZO than that with 11-nm HZO (**Fig. 3(b)**) even under the same MW of around 0.5 V. This result is beneficial to better data readout accuracy in non-volatile memory applications.

4. Conclusion

We have shown that HZO scaling in n-FeFET will not only bring low voltage operation due to higher $2Pr$, but also facilitate lower $S.S.$ value and higher I_{on}/I_{off} under the same voltage range or MW, because of its higher capacitance.

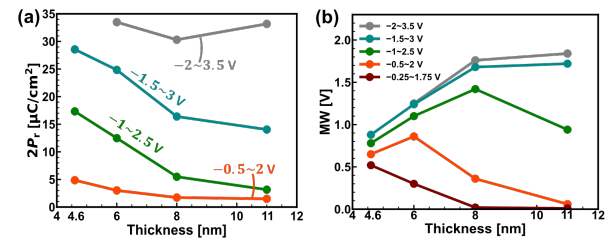


Fig 1. (a) $2Pr$ as a function of thickness under various operation voltage ranges, measured at 4 kHz (b) MWs as a function of HZO thickness under various operation voltage ranges, extracted from DC I_d-V_g .

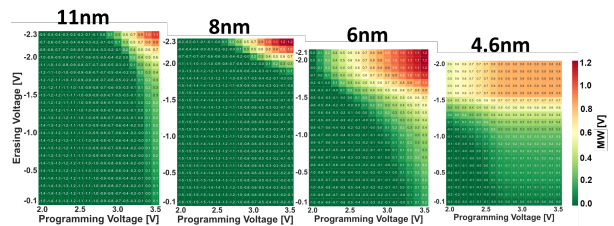


Fig 2. MWs of FeFETs with 11-, 8-, 6-, and 4.6-nm thick HZO, extracted from different programming (positive) voltages and erasing (negative) voltages with 1 μ s pulse width.

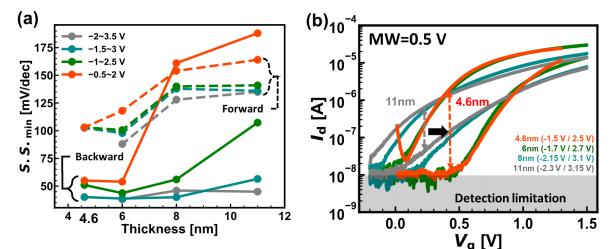


Fig 3. (a) $S.S.$ min of FeFETs with 11-, 8-, 6-, and 4.6-nm thick HZO (b) Fast I_d-V_g curves of FeFETs with 11-, 8-, 6-, 4.6-nm thick HZO.

Acknowledgments This work was supported by JST CREST Grant Number JPMJCR20C3 and JSPS KAKENHI Grant Number 21H01359, Japan.

References [1] T. S. Böscke et al., IEDM, 547 (2011). [2] A. Khan et al., Nat. Electron. 3, 588 (2020). [3] E. Yurchuk et al., IEEE TED 63, 3501 (2016). [4] N. Gong et al., IEEE EDL 39, 15 (2018). [5] K. Toprasertpong et al., ACS Appl. Mat. Int. 14, 51137 (2022). [6] N. Tasneem et al, IEEE EDL, 99, 1 (2021). [7] K. Toprasertpong et al IEEE EDL, 41, 1588 (2020)

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.9] Code-sharing Session of 6.2 & KS

[21a-C402-1~7] CS.9 Code-sharing Session of 6.2 &KS

Takayuki Iwasaki(Tokyo Tech)

Thu. Sep 21, 2023 9:00 AM - 10:45 AM C402 (Int'l Ctr.)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

[21a-C402-1] Hall mobility of phosphorus doped n-type (111) diamond films doped with TBP

○Hiroyuki Kawashima¹, Riku Kawase¹, Hiromitsu Kato², Norio Tokuda³, Satoshi Yamasaki³, Masahiko Ogura², Toshiharu Makino², Naoya Morioka^{1,4}, Norikazu Mizuochi^{1,4} (1.Kyoto Univ., 2.AIST, 3.Kanazawa Univ., 4.CSRN)

9:00 AM - 9:15 AM

△[21a-C402-2] Fabrication of NV Center by Chamber Flame Synthesis

○(B)Kazumi Abe¹, Mayu Ueda¹, Yudai Asano¹, Syuntaro Usui¹, Takashi Tanii¹, Yuto Sato², Sadao Takeuchi², Hiroshi Kawarada^{1,3} (1.Waseda Univ., 2.Nippon Institute of Tech, 3.ZAIKEN)

9:15 AM - 9:30 AM

△[21a-C402-3] Generation of Narrow Linewidth Diamond Nitrogen-Vacancy Centers by Laser Annealing

○Kengo Sugihara¹, Ami Matsuki¹, Shinobu Onoda^{2,3,4}, Hiromitsu Kato^{2,3,5}, Toshiharu Makino^{2,3,5}, Akira Kamimaki^{2,3}, Yuhei Sekiguchi^{2,3}, Hideo Kosaka^{1,2,3} (1.Grad. Sch. Eng., Yokohama Natl. Univ., 2.IAS, Yokohama Natl. Univ., 3.QIC, Yokohama Natl. Univ., 4.QST, 5.AIST)

9:30 AM - 9:45 AM

[21a-C402-4] Electron Irradiation NV Center Formation on Nano-Diamonds for Quantum Biosensors

○Hiroshi Abe¹, Seiichi Saiki¹, Kiichi Kaminaga², Ryuji Igarashi², Takeshi Ohshima¹ (1.QST QuBS, 2.QST QLMS)

9:45 AM - 10:00 AM

△[21a-C402-5] Generation of Entanglement State between NV Center Pair Created by Molecular Ion Implantation

○(D)Kosuke Kimura^{1,2}, Shinobu Onoda^{2,3}, Wataru Kada¹, Tokuyuki Teraji^{4,3}, Junichi Isoya⁵, Tomoya Baba^{1,2}, Masaya Goto^{1,2}, Osamu Hanaizumi¹, Takeshi Ohshima² (1.Gunma Univ., 2.QST, 3.YNU-QIC, 4.NIMS, 5.Univ. of Tsukuba)

10:00 AM - 10:15 AM

△[21a-C402-6] The NV centers induced amplification of coherent phonons in diamond

○(DC)Takuto Ichikawa¹, Junjie Guo¹, Paul Fons², Toshu An³, Muneaki Hase¹ (1.Univ. of Tsukuba, 2.Keio Univ., 3.JAIST)

10:15 AM - 10:30 AM

▲[21a-C402-7] Effect of magnetostrictive film thickness on enhancing magnetic sensing performance of diamond MEMS resonator

O(PC)Zilong Zhang¹, Guo Chen¹, Keyun Gu¹, Yasuo Koide¹, Satoshi Koizumi¹, Meiyong Liao¹ (1.NIMS)

10:30 AM - 10:45 AM

TBPによる(111)面リンドープ n 型ダイヤモンド膜のホール移動度 Hall mobility of phosphorus doped n-type (111) diamond films doped with TBP

京大化研¹, 産総研², 金沢大³, 京大 CSRN⁴, [○]川島 宏幸¹, 川瀬 凜久¹, 加藤 宙光²
徳田 規夫³, 山崎 聡³, 小倉 政彦², 牧野 俊晴², 森岡 直也^{1,4}, 水落 憲和^{1,4}

Kyoto Univ.¹, AIST², Kanazawa Univ.³, CSRN⁴,

[○]Hiroyuki Kawashima¹, Riku Kawase¹, Hiromitsu Kato², Norio Tokuda³, Satoshi Yamasaki³,
Masahiko Ogura², Toshiharu Makino², Naoya Morioka^{1,4}, Norikazu Mizuochi^{1,4}

E-mail: kawashima.hiroyuki.7w@kyoto-u.ac.jp

これまで我々は窒素-空孔 (NV) 中心の室温における世界最長のスピンコヒーレンス時間 (T_2), 及び単一 NV 中心での最高磁場感度をリンドープ n 型ダイヤモンドにおいて観測し^[1], さらにリンドープにより NV 中心の電荷状態が安定化することも確認している^[2]. n 型ダイヤにより NV 中心の特性を向上させた点は, n 型半導体特性を活かした量子情報デバイスへの幅広い応用へも道を拓くものと期待している.

前回, 我々は世界最長^[1]に迫る T_2 (=2.2 ms) を毒性の少ないターシャルブチルフォスフィン (TBP) のみをリンのドーパントとして用いたアリオス製直接給電式プラズマ CVD 装置による合成で得られたことを報告した^[3]. 今回は, パワーデバイス等への応用においても重要な指標であるホール移動度等に着目し, 高温ホール効果測定法により各ダイヤ膜の n 型半導体としての電気的特性を調べた. また, それらの試料中で, 単一 NV 中心の T_2 も計測した. なお T_2 は主に膜中の窒素濃度に依存しているため^[4], サンプルは不純物抑制に効果的であった合成時の圧力を変えたものを中心に測定対象に選択した.

Fig.1 にホール効果によるキャリア密度測定結果の一例を示す. 合成時圧力 50 kPa を含むどのダイヤ膜も高温下においては n 型が得られており, 中でも Fig.2 に示すように 15 kPa のもので室温移動度 $580 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ が得られ, TBP 起因での(111)面リンドープダイヤ膜において従来の $308 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ^[5] より高い値を観測した. また, これらの試料においてミリ秒レベルの十分に長い T_2 も観測された.

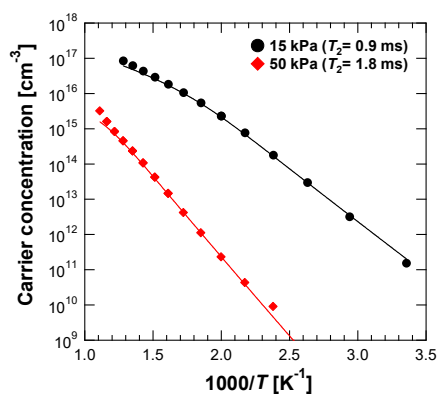


Fig.1 Example of hall effect measurement results.

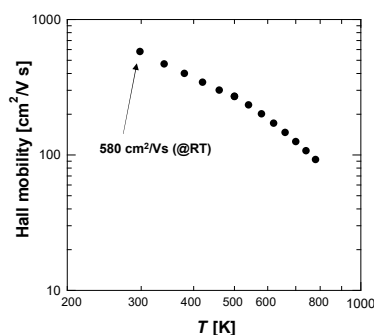


Fig.2 Temperature dependences of hall mobility of diamond film grown at 15 kPa.

【謝辞】 本研究は, JST-OPERA, 科研費 (No. 21H04653) の支援を受け, 部分的に MEXT Q-LEAP (固体 No. JPMXS0118067395), 京都大学化学研究所の国際共同利用・共同研究 (grant # 2023-85, 2023-86) の支援を受けています.

- 【参考文献】** [1] E. D. Herbschleb, et al., *Nat. Commun.*, **10**, 3766 (2019).
[2] Y. Doi, et al., *Physical Review B*, **93**, 081203(R) (2016).
[3] 川瀬凜久, 他, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会.
[4] E. Bauch, et al., *Phys. Rev., B*, **102**, 134210 (2020).
[5] M.-A. Pinault-Thaury, et al., *Carbon*, **175**, 254e258 (2021).

チェンバーフレイム法によるダイヤモンドへのNVセンターの作製 Fabrication of NV Center by Chamber Flame Synthesis

○阿部和実¹, 上田真由¹, 浅野雄大¹, 臼井俊太郎¹, 谷井孝至¹, 佐藤勇斗², 竹内貞雄²,
川原田洋^{1,3}

(1. 早大, 2. 日工大, 3. 早大材研)

Kazumi Abe¹, Mayu Ueda¹, Yudai Asano¹, Shuntaro Usui¹, Takashi Tani¹,

Yuto Sato², Sadao Takeuchi², Hiroshi Kawarada^{1,3}

(1. Waseda Univ., 2. Nippon Institute of Tech, 3. ZAIKEN)

E-mail: twinsk@ruri.waseda.jp

ダイヤモンドの合成方法は大きく高温高压(HPHT)法と化学気相成長(CVD)法2種類に分けられる。さらに、CVD法にはマイクロ波プラズマ法や熱フィラメント法、燃焼炎法が提案されている。これまで我々は、マイクロ波プラズマ法を用いて、高濃度窒素ドーパダイヤモンドを合成し、高濃度NVセンターの作製を行ってきた。その結果、世界最高濃度のNVアンサンブルの作製に成功しているが[1]、より高濃度NV作成には、他の気相合成方法の検討も必要である。燃焼炎法は1988年に広瀬によって開発されたダイヤモンド合成法であるが[2,3]、当初は不純物制御が不可能であった。そこで、竹内らはチェンバー内で燃焼炎を生成(チェンバーフレイム法)し、不純物制御を可能とした[4]。Fig.1にチェンバーフレイム法で合成したホモエピタキシャル燃焼炎ダイヤモンドのカソードルミネッセンス(CL)スペクトルを示す[4,5]。ダイヤモンドの結晶性は235nmに現れる結晶の完全性を示す自由励起子発光(FETO)ピークと、結晶欠陥に起因するBandAピークの強度比F/Aで評価される。Fig.1に示すようにチェンバーフレイム法で作製したダイヤモンドのCLスペクトルのF/A比は625であり、不純物を制御し、高純度化が可能なおうえ、欠陥が非常に少ない高品質結晶が作成可能であるという特徴を持つ。

今回我々はこの方法により窒素ドーパダイヤモンドを合成し、NVセンターの作製を試みた。本研究では、Mo基板に対してヘテロエピタキシャル成長を行った。装置の概要をFig.2に示す[4]。原料ガスにはC₂H₄, O₂, N₂を用いた。Mo基板温度を900°C、N₂を0 sccmと50 sccmの2条件に設定し多結晶ダイヤモンドを作製した。最後に、作製した燃焼炎ダイヤモンド中のNVセンターをフォトルミネッセンス(PL)測定で評価した。

その結果、成膜時に窒素を50 sccm流し合成した試料において637nmにNV-のZPLを確認した(Fig.3)。また、0 sccmでの合成ではNVセンターは検出されなかった。この結果は、チェンバーフレイム法がNVセンターの形成制御に適用可能であることを示している。

- [1] 浅野雄大, 川原田洋, 応用物理学会春季学術講演会, 16p-A408-4 (2023).
- [2] 広瀬洋一, 近藤紀明, 第35回応用物理学会学術講演会予稿集第2分冊, 29a-T-1, p.434(1988)
- [3] 広瀬洋一, 表面技術, 42,1212-1216(1991).
- [4] 竹内貞雄, 村川正夫, 表面技術 52, 120-124 (2000).
- [5] T. Tsutsumi, S. Takeuchi, M. Murakawa, H. Kawarada, Japan New Diamond Forum, pp. 363-366 (1994).

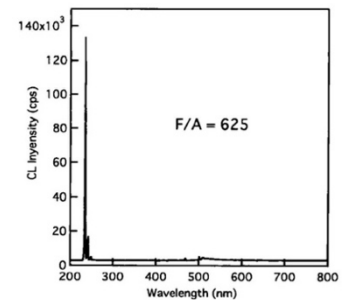


Fig.1. CL spectrum of homoepitaxial diamond film synthesized by the chamber flame method. [5]

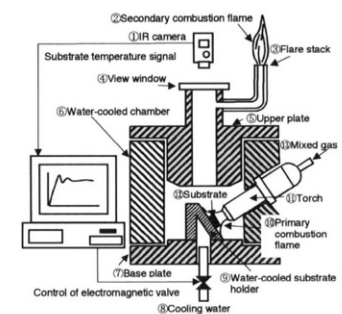


Fig.2 Schematic view of the chamber flame synthesis apparatus. [4]

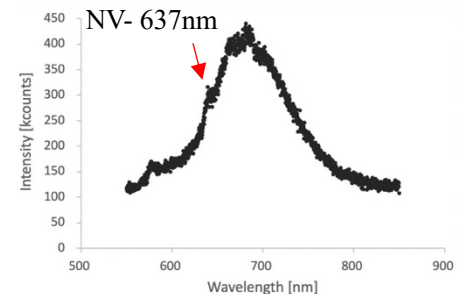


Fig.3 PL spectrum by the chamber flame method

レーザーアニールによる狭線幅なダイヤモンド窒素-空孔中心の生成

Generation of Narrow Linewidth Diamond Nitrogen-Vacancy Centers by Laser Annealing

横国大院理工¹, 横国大 IAS², 横国大 QIC³, 量研⁴, 産総研⁵ ◯杉原 健吾¹, 松木 愛美¹,

小野田 忍^{2,3,4}, 加藤 宙光^{2,3,5}, 牧野 俊晴^{2,3,5}, 上牧 瑛^{2,3}, 関口 雄平^{2,3}, *小坂 英男^{1,2,3}

Grad. Sch. Eng., Yokohama Natl. Univ.¹, IAS, Yokohama Natl. Univ.², QIC, Yokohama Natl. Univ.³, QST⁴, AIST⁵,

◯Kengo Sugihara¹, Ami Matsuki¹, Shinobu Onoda^{2,3,4}, Hiromitsu Kato^{2,3,5}, Toshiharu Makino^{2,3,5},

Akira Kamimaki^{2,3}, Yuhei Sekiguchi^{2,3}, *Hideo Kosaka^{1,2,3}

*E-mail: kosaka-hideo-yp@ynu.ac.jp

長距離量子通信の実現には光ファイバの伝送損失による制限を克服するため、量子中継技術による光子の伝送が必要である。我々は量子中継器に用いる量子系としてダイヤモンド中の窒素-空孔中心（以下、NV 中心）に着目し研究を行なっている。NV 中心の励起効率・発光効率を向上し量子中継器として実用化するには、ソリッドイマージョンレンズ (Solid immersion lens, SIL) などのダイヤモンドのナノ構造の中心に、共鳴線幅の小さい NV 中心を生成する必要がある。NV 中心の生成には熱によるアニール過程が一般的に必要なが、炉を用いてサンプルを全域的に熱処理すると NV 中心を所望の位置に生成することができない。そこで NV 中心の発光をモニタリングしながらレーザーによる局所的なアニールを行う手法によって、0.1 μm 以下の位置精度で NV 中心を生成できることが報告された[1]。しかしレーザーアニールによる狭線幅な NV 中心の生成は報告されておらず、量子通信に必要な光学的にコヒーレントであるという条件を未だ達成できていなかった。

そこで今回我々はレーザーアニールによって、低温において狭線幅な NV 中心の生成に成功した。その半値全幅は電荷初期化(グリーン)レーザーが有(無)の条件で 86.8 (49.3) MHz と

なり、低温でのコヒーレントな光遷移を持つことを示した。Fig. 1 はその NV 中心の励起 (PLE) スペクトルである。この成果はレーザーアニールで SIL などのナノ構造に狭線幅な NV 中心を局所的に生成できることを示しており、量子中継器に適した NV 中心の決定論的な生成につながる。本講演ではこれらの成果の詳細を発表する。

本研究は JST「ムーンショット型研究開発事業」(JPMJMS2062)、総務省「ICT 重点技術の研究開発 プロジェクトグローバル量子暗号通信網構築のための研究開発」(JPMI00316)、JST-CREST(JPMJCR1773)、科研費基盤研究 (S)、挑戦的研究 (開拓) の支援を得た。

[1] Chen, Y.C. *et al.*, *Optica* **6**(5), 662–667 (2019).

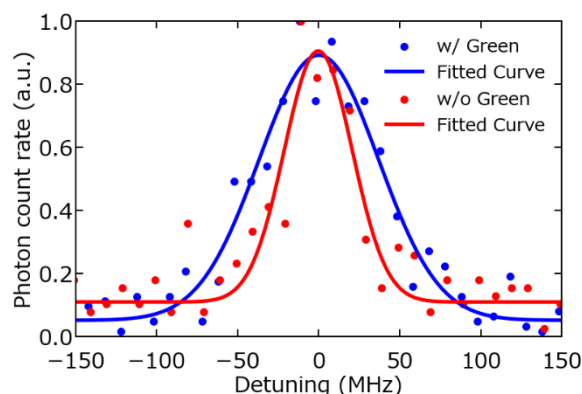


Fig. 1 The photoluminescence excitation spectra with and without a green laser of the NV center created by the ultrashort pulse Ti:sapphire laser.

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 Electron Irradiation NV Center Formation on Nano-Diamonds for Quantum Biosensors

量研量子技術基盤研究¹, 量研量子生命・医学² °阿部 浩之¹, 佐伯 誠一¹, 神長 輝一²,
五十嵐 龍治², 大島 武¹

QST QuBS¹, QST QLMS², °Hiroshi Abe¹, Seiichi Saiki¹, 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。これら FNDs は単一細胞レベルから動物レベルまでの幅広い生体に導入することができ、それらの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・電気的変化の検出を活用した生体内のイメージング材料として有望である。これら FNDs の量子性を利用した量子計測・センサ技術のためには、より効率的にダイヤモンド中 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、高発光・高感度化 FNDs 形成に向けた電子線照射及びその後の熱処理条件の最適化を進めている[1]。

本研究では平均粒径 50 nm ナノダイヤモンド(ND)に対し 2 MeV 電子線照射、照射量 $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ として照射モード (高温照射/室温照射) の違いによる ND 中 NVC 形成[2]とそれら量子センシングに必要な蛍光強度や磁気共鳴信号について調べた。高温照射はヒーター加熱に加え、電子線照射による発熱を利用することで真空中にて 815°C 程度に維持しながら電子線照射を 6 時間実施した。室温照射は照射後、熱処理プロセスで高純度アルゴンガスフローにて 815°C、6 時間の熱処理を施した。最後にどちらも大気中 575°C で 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 2 つの照射モードにより形成させた 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、NV 濃度は電子スピン共鳴 (ESR)、そして光検出磁気共鳴(ODMR)測定を通じて dip 深さ測定し、種々の相関関係を調べた。

図は電子線照射モードの違いによる NVC の蛍光強度を示す。高温と室温照射において、前者の蛍光強度の方が後者よりも約 1.3 倍高強度であることを確認した。800°C 程度の高温照射で ND へ高効率に NVC 形成を導入出来、高品質化が可能であることを示唆する結果が得られた。

【参考文献】

- [1] 阿部浩之 他、高温電子線照射によるナノダイヤモンドへの NV センター形成、第 82 回応用物理学会春季学術講演会、2021 年 9 月 10~13 日、名城大学白天キャンパス (愛知・名古屋)
- [2] M. Capelli et. al., Increased nitrogen-vacancy centre creation yield in diamond through electron beam irradiation at high temperature, Carbon 143(2019)714-719.

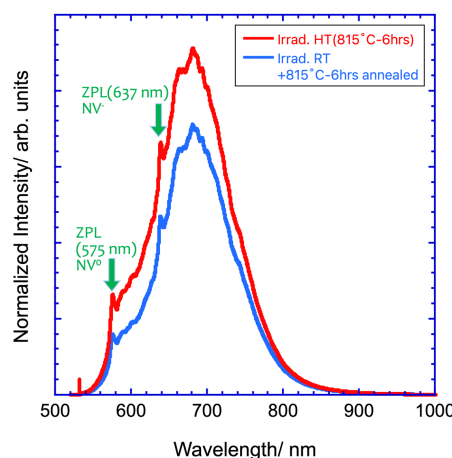


Fig. PL intensity for FND fabricated using different irradiation/annealing processes

分子イオン注入によって形成した NV センター対の量子もつれ状態生成

Generation of Entanglement State between NV Center Pair Created by Molecular Ion Implantation

群馬大¹, 量研², 横国大 QIC³, 物材機構⁴, 筑波大⁵
 ○(D)木村晃介^{1,2}, 小野田忍^{2,3}, 加田渉¹, 寺地徳之^{4,3},
 磯谷順一⁵, 馬場智也^{1,2}, 後藤政哉^{1,2}, 花泉修¹, 大島武²
 Gunma Univ.¹, QST², YNU-QIC³, NIMS⁴, Univ. of Tsukuba⁵
 ○K. Kimura^{1,2}, S. Onoda^{2,3}, W. Kada¹, T. Teraji^{4,3},
 J. Isoya⁵, T. Baba^{1,2}, M. Goto^{1,2}, O. Hanaizumi¹, and T. Ohshima²
 E-mail: t222d002@gunma-u.ac.jp, kimura kosuke@qst.go.jp

【はじめに】

ダイヤモンド中の窒素・空孔(NV)センターを用いた量子センサ応用において、双極子結合した NV センター対に量子もつれ状態を生成させてセンシングに応用できれば、さらなる高感度測定が期待できる[1]。NV センター対の量子もつれ状態の生成は、マイクロビームを用いた N^{3+} イオン注入[2]やナノホールマスク越しの N^+ イオン注入[3]によって形成された NV センター対を用いて、実験的に実証されている。我々は、上記手法と異なる分子イオン注入法を開発し、NV センターの形成を行ってきた[4,5,6]。中でも、有機化合物イオン注入[5,6]は、他の手法と比べ近接した位置に NV センターを効率的に形成でき、強い双極子結合が見込めるため高忠実度での量子もつれ状態の生成が期待できる。

我々は有機化合物イオン注入によって NV センターを形成し、そのコヒーレンス時間(T_2)と双極子結合の強さ(v_{dip})を Hahn echo 法及び電子電子二重共鳴(DEER)法を用いて評価してきた。本研究では、 T_2 及び v_{dip} の優れた NV センター対を選定し、量子もつれ生成の忠実度を評価した結果について報告する。

【実験及び結果】

双極子結合した NV センター対(Fig.1(a))を形成するため、 $C_5N_4H_n$ イオンを 65 keV で加速しダイヤモンドに注入した。 $C_5N_4H_n$ イオンはダイヤモンドとの衝突により個々の原子に分解され、各窒素原子は 9 ± 4 nm の間隔で注入される。注入後、アニール処理(1000°C, 2 時間)を施し、NV センターを形成した[5]。

形成した NV センターは共焦点蛍光顕微鏡(CFM)を用いて観察した。Hahn echo 法及び DEER 法は 532 nm のレーザーとマイクロ波パルスを用いて、静磁場下で測定した。共鳴周波数の異なる 2 つの NV センター(2.6279 GHz, 2.6778 GHz)は個別に操作でき、それぞれの T_2 は Hahn echo 法にて 109.3 μ s, 66.91 μ s と測定された。2 つの NV センター対の v_{dip} は DEER 法にて 98.4 kHz と測定された。

測定した T_2 と v_{dip} を用いて量子状態トモグラフィのシミュレーションを行った。シミュレーション結果を Fig. 1 (b)に示す。それぞれの成分は絶対値をとり正の実数に規格化している。シミュレーション結果より忠実度は 0.95 と計算され、高忠実度が期待できる。本シミュレーションでは、初期化読み出し時のエラーや、スピン操作エラーなどの影響を考慮していない。発表では、量子状態トモグラフィの観測結果も含めて議論する。

【謝辞】

本研究は JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム JPMJSP2146、JSPS KAKENHI・No. 21H04646、20H02187、20H05661、JST ムーンショット型研究開発事業・JPMJMS2062、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、JPMXS011806837、及び総務省グローバル量子暗号通信網構築のための研究開発(JP MI00316)の支援を受けた。

【参考文献】

[1] C. Degen, *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 035002 (2017). [2] P. Neumann, *et al.*, *Nat. Phys.* **6**, 249 (2010). [3] F. Dolde, *et al.*, *Nat. Phys.* **9**, 139 (2013). [4] T. Yamamoto, *et al.*, *Phys. Rev. B* **88**, 201201(R) (2013). [5] M. Haruyama, *et al.*, *Nat. Commun.* **10**, 2664 (2019). [6] K. Kimura, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **15**, 066501 (2022).

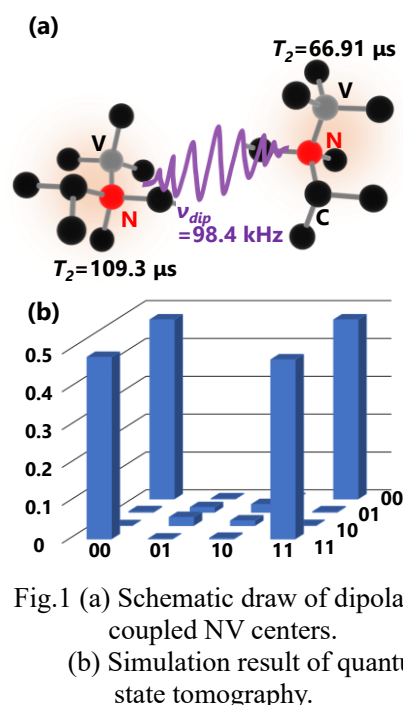


Fig.1 (a) Schematic draw of dipolar coupled NV centers.
 (b) Simulation result of quantum state tomography.

NV センター導入によるダイヤモンド中のコヒーレントフォノンの増幅

The NV centers induced amplification of coherent phonons in diamond

筑波大¹, 慶応大², 北陸先端大³ ○(DC) 市川卓人¹, 郭俊杰¹, フォンス ポール², 安東秀³, 長谷 宗明¹

Univ. of Tsukuba¹, Keio Univ.², JAIST³ ○Takuto Ichikawa¹, Junjie Guo¹, Paul Fons², Toshu An³ and

Muneaki Hase¹ E-mail: s2130052@s.tsukuba.ac.jp

固体材料の中心反転対称性の破れは、2次の非線形光学効果等の特定の物理現象を発現するための必須条件になることが知られている。我々は、固体スピン量子ビット等の量子技術応用が期待されている窒素-空孔複合欠陥 (NV センター)[1] がダイヤモンド中に局所的な中心反転対称性の破れを生じ、第2高調波発生[2]等の2次の非線形分極による現象が新たに発生することを報告してきた。本研究では、先行研究より更に時間幅の短い(約 10 fs)のレーザーを使用することで、ダイヤモンドの光学モード(約 40 THz)の周波数を持つコヒーレントフォノン (CP) を観測し、NV センターの導入による効果を調べた。その結果、興味深いことに、特定の NV センター濃度を含むダイヤモンドにおいて CP の振幅が元より約 11 倍増大する現象を発見した。これは、一般的に観察される(中心反転対称性を破らない)不純物ドーピングに伴う CP の振幅の減少とは反対の傾向を示していると言える [3]。そこで、我々はこの物理現象の詳細を明らかにするために研究を進めており、その成果を本講演にて発表する。

実験には中心波長 795 nm (光子エネルギー 1.56 eV)、パルス幅 10 fs、励起光フルエンス 0.16 mJ/cm² を実現するチタン・サファイアレーザーを使用し、時間分解電気光学サンプリング法により、CP による過渡反射率変化 $\Delta R_{EO}/R_0$ の変調を観察した。サンプルの“NV ダイ

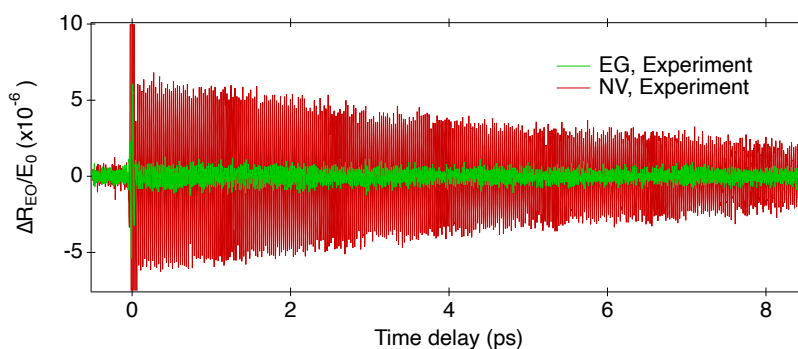


Fig. 1: Time-domain $\Delta R_{EO}/R_0$ signals for EG (green) and NV (red) diamond.

ヤモンド”として、電子グレード (EG) ダイヤモンド単結晶 ([NV] < 0.03 ppb) に N⁺ イオン注入とアニーリングによって、表面深さ 30 – 40 nm の領域に [NV] ~ 0.14 ppm の濃度で NV 中心が形成されたものを用いた。上記の条件で EG ダイヤモンドと NV ダイヤモンドにおいて観察された信号を Fig. 1 に示す。EG ダイヤモンドの CP の初期振幅は、同条件の波長と励起フルエンスで IIa 型ダイヤモンドから得られるものに匹敵する [4]。一方で、NV ダイヤモンドでは同程度の緩和時間(約 7 ps)と周波数(約 40 THz)を保ちながら、CP の初期振幅は約 11 倍大きくなっていることを確認した。したがって、NV ダイヤモンドで観察されたフォノンモードはダイヤモンドの光学モードそのものであるが、元より大きい力により駆動されて大振幅化したと考えられる。NV センターの導入によって発生する追加の駆動力の起源は中心反転対称性の破れによるものと予想され、詳しくは講演にて議論する。

本研究は、科研費 (22J11423, 22KJ0409) および JST-CREST (JPMJCR1875) の支援を受けた。

参考文献

- [1] A. Gruber et al., *Science* **276**, 2012 (1997).
- [2] A. Abulikemu et al., *ACS Photonics* **8**, 988 (2021).
- [3] T. Ichikawa et al., *AIP Advances*, **10**, 105117 (2020).
- [4] K. G. Nakamura et al., *Phys. Rev. B* **94**, 024303 (2016).

Effect of magnetostrictive film thickness on enhancing magnetic sensing performance of diamond MEMS resonator



National Institute for Materials Science, °(PC) Zilong Zhang, Guo Chen, Keyun Gu,

Yasuo Koide, Satoshi Koizumi and Meiyong Liao

E-mail: meiyong.liao@nims.go.jp

Single-crystal diamond (SCD) has outstanding mechanical strength, thermal conductivity, and chemical inertness, which make it a promising material for high-performance and high-reliability MEMS devices superior to other semiconductor materials (Si, III-nitride, SiC, etc.).¹⁻³ A smart method for the mass production of SCD N/MEMS resonators with high reproducibility *via* the ion-implantation assisted lift-off technique was developed by our group.⁴ Based on the magnetostrictive effect, the SCD resonator coupling with a magneto-strictive FeGa film offers a promising strategy for fabricating high-performance magnetic sensors, especially for high-temperature application regimes.^{5,6}

In our previous works, the magnetic sensors of SCD resonators with FeGa/Ti thin films realized the sensing up to 773K, which was superior to the as-reported high-temperature magnetic sensors.⁶ The impact of various interlayers on sensing performances was disclosed and discussed.⁷ In addition, an integrated on-chip SCD-based resonator through using a self-sensing and actuation scheme was proposed for high-temperature magnetic sensing. The on-chip sensor was electrically actuated and the resonance vibration was simultaneously electrically readout.⁸

In the present work, the magnetic sensors of SCD resonators with FeGa films of various thickness were developed to improve the sensing performance. The FeGa films on SCDs exhibited low coercivity (<30 Oe) and high saturation magnetization. Figure 1 shows the dependences of resonance frequency shifts of 3 sensors on the thicknesses of the FeGa films. The frequency shifts of the SCD resonators are greatly enhanced by the increasing FeGa thickness, indicating an exponential increasing relationship. This work offers a useful guidance to fabricate high performance SCD-based sensors.

References:

- [1] Z. Zhang, M. Liao, et al., *Carbon* 170, 294-301 (2020). [2] Z. Zhang, M. Liao, et al., *Carbon* 152, 788-795 (2019). [3] Z. Zhang, M. Liao, et al., *2019 IEEE IEDM* 34.6, 1-4 (2019). [4] M. Liao, et al., *Adv. Mat.* 22, 5393 (2010). [5] Z. Zhang, M. Liao, et al., *Mater. Res. Lett.* 8, 180-186 (2020). [6] Z. Zhang, M. Liao, et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 12, 23155-23164 (2020). [7] Z. Zhang, M. Liao, et al., *Carbon* 200, 401-409 (2022). [8] Z. Zhang, M. Liao, et al. *Adv. Funct. Mat.* 2300805 (2023).

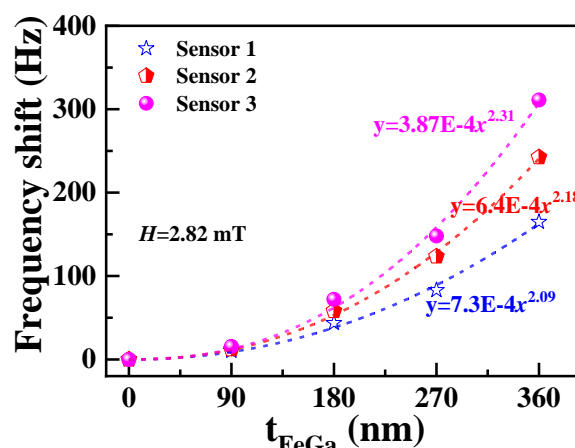


Figure 1. Variations of frequency shifts of SCD sensors with the FeGa film thicknesses

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.9] Code-sharing Session of 6.2 & KS

[22p-A601-1 ~ 17] CS.9 Code-sharing Session of 6.2 & KS

Hiroki Morishita(Tohoku Univ.), Hiromitsu Kato(AIST), Kento Sasaki(The Univ. of Tokyo)

Fri. Sep 22, 2023 1:00 PM - 5:45 PM A601 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

- △[22p-A601-1] **Design and fabrication of a diamond racetrack resonator with high quality-factor**
 ○Shun Naruse¹, Ryota Katsumi¹, Takeshi Hizawa¹, Daichi Sato¹, Kenta Kawai¹, Kosuke Takada¹, Takashi Yatsui¹ (1.TUT)
 1:00 PM - 1:15 PM
- △[22p-A601-2] **Development of 3D microwave resonators for applications in nanodiamond thermometry**
 ○Hiromu Nakashima¹, Keisuke Oshimi¹, Masazumi Fujiwara¹ (1.Okayama Univ)
 1:15 PM - 1:30 PM
- △[22p-A601-3] **Improvement of NV center's detection in detonation nanodiamond for biological applications**
 ○Nene Hariki¹, Frederick Tze Kit So^{1,2}, Masaya Nemoto¹, Masanori Fujiwara¹, Izuru Ohki^{1,2}, Naoya Morioka^{1,3}, Ming Liu⁴, Akihiko Tsurui⁴, Taro Yoshikawa⁴, Yuto Makino⁴, Masahiro Nishikawa⁴, Norikazu Mizuochi^{1,3} (1.ICR, Kyoto Univ., 2.QST, 3.CSRN, Kyoto Univ., 4.Daicel Corp.)
 1:30 PM - 1:45 PM
- △[22p-A601-4] **Comparison of Frequency Response of Nitrogen-Vacancy Center in Diamond with Scalar-mode Optically Pumped Magnetometer**
 ○(M2)Saori Ikeda¹, Yosuke Ito¹ (1.Kyoto Univ.)
 1:45 PM - 2:00 PM
- △[22p-A601-5] **Analysis of Electron Spin Double Resonance Spectra in Diamond Using Lindblad Master Equation**
 ○Rui Suzuki^{1,2}, Takumi Mikawa^{1,2}, Ryusei Okaniwa^{1,2}, Yuichiro Matsuzaki³, Norio Tokuda⁴, Junko Ishi-Hayase^{1,2} (1.Keio Univ., 2.Keio CSRN, 3.Chuo Univ., 4.Kanazawa Univ.)
 2:00 PM - 2:15 PM
- △[22p-A601-6] **Sensitivity improvement of Diamond Quantum Sensors by Continuously Excited Ramsey Method**
 ○Yuta Araki¹, Ikuya Fujisaki¹, Zehan Li¹, Yuji Hatano¹, Takeharu Sekiguchi¹, Takayuki Iwasaki¹, Mutsuko Hatano¹ (1.Tokyo Tech.)
 2:15 PM - 2:30 PM
- △[22p-A601-7] **Quadrature detection method for two dimensional NV-NMR toward single cell measurement**
 ○Kohki Morita¹, Izuru Ohki^{1,2}, Norio Tokuda³, Norikazu Mizuochi^{1,4} (1.ICR, Kyoto Univ., 2.QST, 3.Kanazawa Univ., 4.CSRN Kyoto Univ.)
 2:45 PM - 3:00 PM

- ▲[22p-A601-8] **Coherence-based quantum sensing of low-frequency fields**
 ○Ernst David Herbschleb¹, Izuru Ohki², Kohki Morita¹, Yoshiharu Yoshii³, Hiromitsu Kato⁴, Toshiharu Makino⁴, Satoshi Yamasaki⁵, Norikazu Mizuochi¹ (1.Kyoto university, 2.QST, 3.Sumida Corporation, 4.AIST, 5.Kanazawa university)
 3:00 PM - 3:15 PM
- [22p-A601-9] **Diamond NV magnetometer sensor head for high sensitivity and miniaturization**
 ○Yuta Kainuma¹, Yuji Hatano¹, Takayuki Shibata², Hiromitsu Kato³, Shinobu Onoda⁴, Takeshi Ohshima⁴, Mutsuko Hatano^{1,4}, Takayuki Iwasaki¹ (1.Tokyo Tech, 2.DENSO CORPORATION, 3.AIST, 4.QST)
 3:15 PM - 3:30 PM
- [22p-A601-10] **Verification of Robustness in Electric Vehicle Battery Monitoring with Diamond Quantum Sensor**
 ○Yuji Hatano¹, Junya Tanigawa², Akimichi Nakazono², Takeharu Sekiguchi¹, Yuta Kainuma¹, Abe Hiroshi³, Onoda Shinobu³, Ohshima Takeshi³, Iwasaki Takayuki¹, Hatano Mutsuko¹ (1.Tokyo Tech, 2.YAZAKI Corp., 3.QST)
 3:30 PM - 3:45 PM
- △[22p-A601-11] **Developing a sensitive diamond quantum sensor system for detecting the brain magnetic field of a living rat**
 ○(M1)Atsumi Yoshimura¹, Naota Sekiguchi¹, Motofumi Fushimi², Atsuhiko Kitada¹, Chikara Shinei³, Masashi Miyakawa³, Takashi Taniguchi³, Tokuyuki Teraji³, Shinobu Onoda⁴, Takeshi Ohshima⁴, Masaki Sekino², Takayuki Iwasaki¹, Mutsuko Hatano¹ (1.Tokyo Tech., 2.Univ. of Tokyo, 3.NIMS, 4.QST)
 3:45 PM - 4:00 PM
- [22p-A601-12] **Mapping of the RF field by optically detected magnetic resonance in diamond NV centers**
 ○Yoshikatsu Ohkubo¹, Shunta Onodera¹, Mari Nakagawa¹, Yusuke Azuma¹, Hideyuki Watanabe², Satoshi Kashiwaya³, Shintaro Nomura¹ (1.Univ. Tsukuba, 2.AIST, 3.Nagoya Univ.)
 4:00 PM - 4:15 PM
- △[22p-A601-13] **Imaging of magnetization dynamics of soft magnetic thin film for power electronics by diamond quantum sensors**
 ○(D)Ryota Kitagawa¹, Shunsuke Nagata¹, Teruo Kohashi², Aoi Nakatsuka¹, Takeyuki Tsuji¹, Honami Nitta¹, Kosuke Mizuno¹, Yota Takamura¹, Takayuki Iwasaki¹, Shigeki Nakagawa¹, Mutsuko Hatano¹ (1.Tokyo Tech, 2.Hitachi, Ltd.)
 4:30 PM - 4:45 PM
- [22p-A601-14] **High Sensitivity of Temperature Measurement using ODMR Method with Lock-in detection Method**
 ○(M1)Shotaro Kawai¹, Yosikazu Simeno¹, Yoshiaki Nagao¹, Yuji Kuwamura¹, Takeo maruyama¹ (1.Kanazawa Univ.)
 4:45 PM - 5:00 PM
- [22p-A601-15] **Evaluation of Annealing Time Dependence for Efficient Creation of Group IV-V Center**
 ○(M2)Tomoya Baba^{1,2}, Shinobu Onoda^{2,3}, Kosuke Kimura^{1,2}, Wataru Kada¹, Takashi Taniguchi⁴, Masashi Miyakawa⁴, Takeshi Ohshima², Osamu Hanaizumi¹ (1.Gunma

Univ., 2.QST, 3.YNU-QIC, 4.NIMS)

5:00 PM - 5:15 PM

[22p-A601-16]

Charge state dynamics of a tin-vacancy center in diamond

○(B)Yiyang Chen¹, Keita Ikeda¹, Peng Wang¹, Takashi Taniguchi², Shinobu Onoda³,
Mutsuko Hatano¹, Takayuki Iwasaki¹ (1.Tokyo Tech, 2.NIMS, 3.QST)

5:15 PM - 5:30 PM

[22p-A601-17]

Spin Selective Excitation of a PbV Center in Diamond

○(M2)Kazuki Oba¹, Peng Wang¹, Takashi Taniguchi², Mutsuko Hatano¹, Takayuki
Iwasaki¹ (1.Tokyo Tech, 2.NIMS)

5:30 PM - 5:45 PM

高 Q 値ダイヤモンドレーストラック共振器の設計及び作製の検討

Design and fabrication of a diamond racetrack resonator with high quality-factor

¹豊橋技科大, [○]鳴瀬 駿¹, 勝見亮太¹, 飛沢 健¹, 佐藤大地¹, 河合健太¹, 高田晃佑¹, 八井 崇¹

¹TUT, [○]S. Naruse¹, R. Katsumi¹, T. Hizawa¹, D. Sato¹, K. Kawai¹, K. Takada¹, and T. Yatsui¹

E-mail: naruse.shun.uu@tut.jp

はじめに 単結晶ダイヤモンド中の集団窒素-空孔(NV)センターを利用する量子センサは、高感度な磁気検出が室温で可能なことが理論上知られており、次世代の高性能磁気センサとして注目されている¹。しかし、今までに報告された集団 NV センターに基づく磁気検出感度は既存の磁気センサと比べて数桁劣っている。これは、ダイヤモンドの高い屈折率(2.4)に起因する全反射により、ダイヤモンド基板から NV センターの発光を効率的に取り出せないからである²。そこで我々は、光閉じ込め効果による高効率な NV 発光の利用とチップ上の集積性や機能性が期待されるレーストラック共振器に着目した³。レーストラック構造は通常のリング共振器と異なり直線構造を有しているため、複数光源のダイポールに合わせた共振器電場の設計が可能になる。今回、電磁界シミュレーションを通じて高 Q 値レーストラック共振器実現の可能性を見出し、単結晶ダイヤモンドからなるレーストラック共振器の作製を行ったので報告する。

実験 本研究では、電磁界シミュレーションを用いて、ダイヤモンドレーストラック共振器の設計を行った(半径 1,400nm, 直線部の長さ 2,578nm)。図 1(a)に導波路の断面図を示す。量子センシングには集団の高密度な NV センターが用いられるが、お互いの発光を吸収してしまうため、発光の高効率な利用が難しい。そこで、NV センターの吸収がない場合の Q 値(Q_0)と吸収がある場合の Q 値(Q_{NV})を求めたところ(波長 678 nm、NV 密度 300 ppb)、 $Q_0 \sim 1.3 \times 10^5$, $Q_{NV} \sim 2.7 \times 10^4$ となり、NV センターの吸収がある場合でも高い Q 値を持つレーストラック共振器の構造を見出した。シミュレーションで得られた電場分布の一例を図 1(b)に示す。

続いてレーストラック共振器の作製を行った。単結晶ダイヤモンド基板上の SiO₂ 膜を加工後、ダイヤモンドにレーストラック構造パターンを転写した。その後、ファラデーケージを用いた斜めエッチングを行うことにより⁴、図 1(c)に示すように中空化されたレーストラック共振器構造を作製した。集団 NV センターを含むダイヤモンドに対して同加工技術を適用することで設計した共振器の作製が可能になると考える。その他詳細は当日報告する。

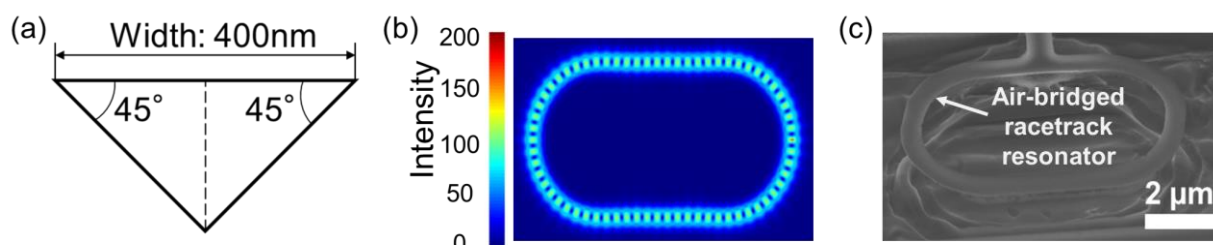


FIG.1. (a) Cross section of the designed racetrack resonator. (b) Calculated electric field distribution in the racetrack resonator. (c) SEM image of the fabricated air-bridged racetrack resonator.

参考文献 ¹J. M. Taylor, *et al.*, Nat. Phys. **4**, 810 (2008). ²D. Le Sage, *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 121202 (2012).

³M. J. Burek, *et al.*, Nat. Commun. **5**, 5718 (2014). ⁴P. Latawiec, *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B **34**, 041801 (2016).

謝辞 MEXT Q-LEAP (JPMXS0118067395)、科研費補助金(21K20428、22H01525、22K14829)、東電記念財団、村田学術振興財団、松尾学術復興財団。

ナノダイヤモンド温度計測への応用を目指した 3次元マイクロ波共振器の開発

Development of 3D microwave resonators for applications in nanodiamond thermometry

岡山大院 環

○中島大夢, 押味佳裕, 藤原正澄

Okayama Univ.

Hiromu Nakashima, Keisuke Oshimi, Masazumi Fujiwara

蛍光ナノダイヤモンド(FND)が示す光検出磁気共鳴(ODMR)現象は、ナノ領域の磁場・温度測定に利用される。ODMRはFNDの窒素欠陥中心に、励起光とマイクロ波を照射した時にみられる、蛍光強度の変化を観察する。この測定技術には、マイクロ波の広範囲かつ均一な照射が求められる。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]。我々は温度測定のさらなる応用に向け、新たなマイクロ波照射機構に注目した。それが広範囲に磁場領域を持ち、電場と磁場がきり分けられる3次元共振器である[2]。この機構を用いてナノダイヤモンドの温度計測を行った[3]。しかし、生体応用に向けいくつかの課題が生じた。1つ目は操作性が低い点である。サンプルの位置を変えるたび、共振器並びに測定に必要な要素をすべて調整しなければならない。2つ目にスペクトルのコントラストの低さが、多点ODMR温度測定における精度を下げる恐れがある。

新たな課題を解決するため我々は測定環境を効率化し、装置の最適化を行った。まず、複雑な測定環境を、コンパクトなシステムへと変更した(図1(a))。サンプルを共振器に組み込み、位置によって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、共振器の検出エリア3mmの範囲で均一なODMRスペクトルが得られた(図1(b))。マイクロ波照射を安定させるため、共振器と同軸ケーブルの相対位置が固定される仕組みを構築し、照射条件の再調整を行った。これにより、同条件でODMRのコントラストが0.03上昇した(図1(c))。講演では、追加で行ったシステム構築や温度測定の実際について報告する。

[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)

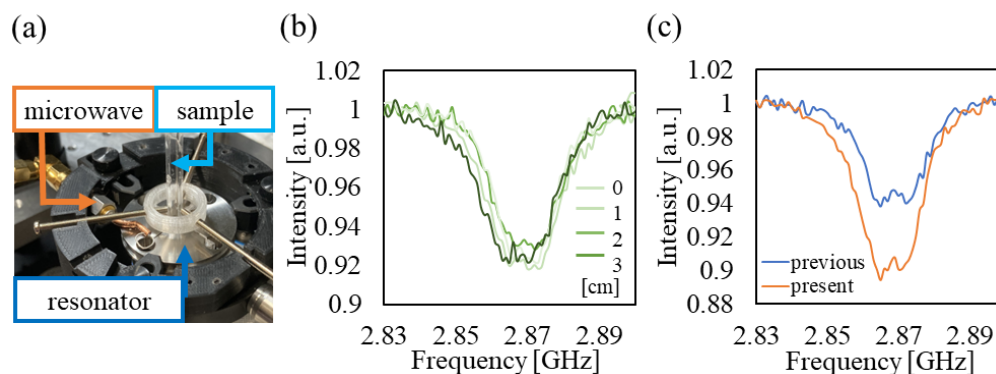


Fig. 1 (a) Photograph of the 3D resonator. (b) contrast uniformity of ODMR spectra (c) difference ODMR contrast between previous system from present

生体応用に向けた爆轟法ナノダイヤモンド中の NV 中心の高効率観測

Efficient detection of NV center in detonation nanodiamond for biological applications

京大化研¹, 量研機構², 京大スピセンター³, (株)ダイセル⁴○(M2)張木 音々¹, 蘇 梓傑^{1,2}, 根本 雅也¹, 藤原 正規¹, 大木 出^{1,2}, 森岡 直也^{1,3},劉 明⁴, 鶴井 明彦⁴, 吉川 太朗⁴, 牧野 有都⁴, 西川 正浩⁴, 水落 憲和^{1,3}ICR, Kyoto Univ.¹, QST², CSRN, Kyoto Univ.³, Daicel Corp.⁴○N. Hariki¹, F. T. K. So¹, M. Nemoto¹, M. Fujiwara¹, I Ohki², N. Morioka^{1,3},M. Liu⁴, A. Tsurui⁴, T. Yoshikawa⁴, Y. Makino⁴, M. Nishikawa⁴, and N. Mizuochi^{1,3}

E-mail: hariki@dia.kuicr.kyoto-u.ac.jp

[研究背景] 近年、細胞内生命現象を可視化するためのプローブが盛んに研究されている。その有力な候補として、発光中心を含むナノダイヤモンド(ND)が挙げられる。特に発光中心の一種である NV 中心は、室温で操作可能な電子スピン $S=1$ を持つため、NV を含有する ND は多機能なバイオセンサへの応用が期待されている。ND の生体応用には、細胞内に入るサイズで、且つ高濃度な NV を持つ ND が必須となる。本研究では粒径 10 nm 未満の ND を安価かつ大量に得られる爆轟法に注目して、発光中心を多く含む爆轟法 ND(DND)の合成を試みた^[1]。しかし、開発当初は爆轟中の窒素から形成が期待される NV が検出できないという問題があった。今回、我々は熱混酸処理により、NV を高効率に観測できることを見出したので報告する。

[実験・結果] 熱混酸前後の DND に対して、電子スピン共鳴(ESR)測定と光検出磁気共鳴(ODMR)測定から NV の検出を試みた。ESR 測定では、NV 基底状態の禁制遷移におけるマイクロ波の磁場共鳴吸収を観測して、非破壊的に試料中の NV を観測できる。図 1 に黒線で示したように、熱混酸前の DND には大きなバックグラウンド信号が観測され、DND 表面に金属不純物が残っていることが示唆された。そこで先行研究^[2]より DND 表面の金属不純物を除去する 72 時間の熱混酸処理が有用と考え、これを行った。図 1 に赤線で示したように、熱混酸後の DND ではバックグラウンドが小さくなり、NV 濃度が既知の参照試料との比較が可能になった。その結果、本研究の DND の NV 濃度が約 1 ppm であると見積もった。本研究の DND では電子線照射やアニール処理をしなくても高い NV 濃度が観測できた。また、この値は同様の熱混酸処理を実施した DND^[3]と比較して約 10 倍高い。ODMR 測定では、NV のスピン磁気量子数 $m_s=0 \leftrightarrow \pm 1$ 間のエネルギー差に相当するマイクロ波を照射し、NV を観測できる。図 2 のように、熱混酸後の DND からは NV に由来する信号が観測できた。また、ND としては高コントラストな 10%以上の輝点も複数確認した。本研究は、MEXT Q-LEAP(No.JPMXS0120330644)の支援を受けて行われた。



Fig.1 X-band ESR spectra of DNDs before/after boiling acid. Fig.2 CW-ODMR spectra of DNDs before/after boiling acid.

[参考文献] [1] Y. Makino *et al.*, *Dia. Relat. Mater.*, **112**, 108248 (2022). [2] D. Terada, F. T. K. So, *et al.*, *Nanoscale Adv.*, **4**, 2268 (2022). [3] F. T. K. So *et al.*, *J. Phys. Chem. C*, **126**, 5206 (2022).

ダイヤモンド中空素空孔中心とスカラー型光ポンピング磁気センサ における周波数特性の比較

Comparison of Frequency Response of Nitrogen-Vacancy Center in Diamond with Scalar-mode Optically Pumped Magnetometer

京大院工[○](M2)池田 早織, 伊藤 陽介

Kyoto Univ.,[○]Saori Ikeda, Yosuke Ito

E-mail: ikeda.saori.47s@st.kyoto-u.ac.jp

【はじめに】

ダイヤモンド中空素空孔中心(Nitrogen-Vacancy Center: NVC)とは、室温・大気圧下で高感度に磁場・電場・温度を計測できる量子センサであり、近年注目されている。生体磁気計測において用いられる磁気センサには超伝導量子干渉素子(Superconducting Quantum Interference Device: SQUID)や光ポンピング磁気センサ(Optically Pumped Magnetometer: OPM)などがあるが、その中でもスカラー型 OPM[1]はダイナミックレンジが広く、周波数領域で磁場を算出するなど NVC と類似する点が多い。

そこで本発表では、NVC とスカラー型 OPM の特徴を理論的・実験的に明らかにし、生体磁気計測に対する有効性について比較検討する。

【原理】

NVC を用いた磁気計測では、光検出磁気共鳴(Optical Detection Magnetic Resonance: ODMR)[2]を用いる。NV 軸に平行な磁場 B が印加されると ODMR スペクトルが $2\gamma_e B$ (γ_e : 電子の磁気回転比)の大きさで分裂することを利用し、磁場を計測する。スカラー型 OPM は、アルカリ金属原子をパルス光によりスピン偏極させ、その自由誘導減衰の周波数から磁場を計測するものである[1]。

【方法】

NVC による磁場計測系として、Figure 1 に示す実験系を構築した。磁気シールド外に NVC を有するダイヤモンドを設置し、ダイヤモンドから 7 cm 離れた位置にフェライト磁石を 5 個設置した。NVC を波長 532 nm の光で励起しつつ、周波数をスイープさせながらマイクロ波を照射した。ダイクロミックミラーやロングパスフィルターを通過させ不要なバックグラウンド光を除去し、NVC から発される赤色蛍光の強度をフォトダイオードにより計測した。最後に、得られた蛍光スペクトルのピーク幅から磁場の大きさを求めた。スカラー型 OPM については文献[3]に示す実験系を用い計測を行った。

【結果および検討】

Figure 2 は ODMR 計測を行った結果である。磁石を置かない場合は、NVC のゼロ磁場分裂にあたる 2.87 GHz 付近で蛍光が減少する様子

が見られた。また、ピークが 2 つに分裂しており、これらの周波数は 2.8676 GHz および 2.8744 GHz であった。この結果から磁束密度を推定すると 121.43 μT と求められる。

一方、磁石を配置した場合は、6 本のピークが観測され、ピークから各磁束密度を推定すると 514 μT 、5.57 mT、6.23 mT となった。蛍光強度が、地磁気のみの場合の蛍光強度より小さいため、NVC の各軸方向のスペクトルの重なりが、磁石からの磁場によって分離したものと考えられる。現状では、蛍光強度のピークの半値幅から 6.80 MHz の分裂までは計測でき、その磁束密度は 121 μT であった。

発表では、OPM を用いた磁気計測結果についても報告し、それぞれの計測感度について比較検討をする。

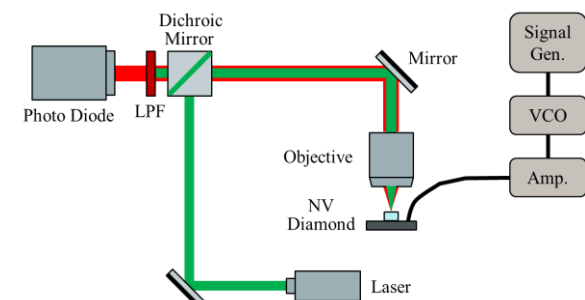


Figure 1: Experimental system for ODMR measurements.

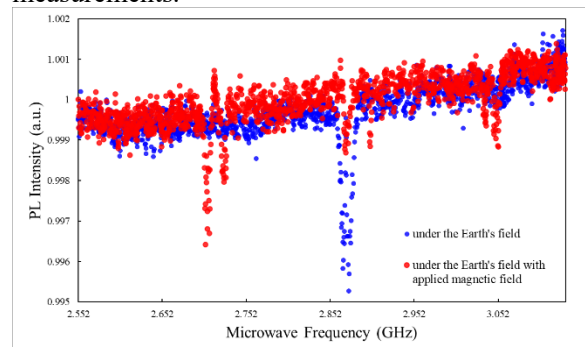


Figure 2: ODMR measurement results.

[1] M. Limes, *et al.*, *Phys. Rev. Appl.*, **14** (2020) 11002.

[2] E. Abe and K. Sasaki, *J. Appl. Phys.*, **123** (2018) 161101.

[3] 堀, 伊藤, 電気学会マグネティックス研究会資料 (2022) MAG-22-170.

Lindblad マスター方程式を用いた ダイヤモンド電子スピン二重共鳴スペクトルの解析 Analysis of Electron Spin Double Resonance Spectra in Diamond Using Lindblad Master Equation

慶大理工¹, 慶大 CSRN², 中大理工³, 金大ナノマリ⁴

○(M1)鈴木 琉生^{1, 2}, 見川 巧弥^{1, 2}, 岡庭 龍聖^{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

○(M1)Rui Suzuki^{1, 2}, Takumi Mikawa^{1, 2}, Ryusei Okaniwa^{1, 2}

Yuichiro Matsuzaki³, Norio Tokuda⁴, and Junko Ishi-Hayase^{1, 2}

E-mail: rui.0322@keio.jp

【背景・目的】 ダイヤモンド中の窒素空孔中心(NV センター)に局在する電子スピンは、常温・常圧下で長いコヒーレンス時間を有し、磁場や電場、温度変化等による量子状態の変化を光学的に読み出せることから、量子センサへの応用が期待されている。代表的なスピン状態の読み出し手法として ESR 信号を光学的に読み出す連続波光検出磁気共鳴(CW-ODMR)がある。この手法は実験上の操作が簡便であり、CCD カメラを用いた2次元イメージングにも適しているが、MHz 帯の交流磁場(RF)の測定は難しかった。そこで、我々のグループは2周波の共鳴磁場により生じる「電子スピン二重共鳴現象(ESDR)」を用いた CW-ODMR による RF 磁場の測定手法^[1, 2]を開発した。しかし、これまで ESDR スペクトルの解析に用いられてきた「調和振動子モデル^[2, 3, 4]」は励起マイクロ波(MW)が非常に弱い場合に成り立つモデルであり、中強度以上の MW 下特有のスペクトルの挙動を説明できなかった。そこで、本研究では中強度以上の MW 下でも適用可能な解析モデルとして Lindblad マスター方程式を用いたモデルを提案し、そのモデルが様々な MW 強度におけるスペクトルの再現に有効であることを明らかにした。

【方法】 NV センターの電子スピンの固有状態は、配向軸に対し垂直に静磁場を印可した場合、及び零磁場下では $|0\rangle, |B\rangle = (|+1\rangle + |-1\rangle)/\sqrt{2}$, $|D\rangle = (|+1\rangle - |-1\rangle)/\sqrt{2}$ と表される ($|0\rangle, |\pm 1\rangle$ は $|m_s\rangle$ を表す)。解析対象となる ESDR スペクトルは、 $|B\rangle, |D\rangle$ 状態間に共鳴する RF を印可しつつ、印可 MW 周波数を掃引しながら NV センターからの蛍光強度を測定することで得られる(Fig. 1(a))。中強度以上の MW 下での ESDR スペクトルを説明するモデルを構築するため、理論的に散逸を取り扱える Lindblad 型のマスター方程式^[5]を用いた。ここでは、LASER による初期化を縦緩和としてモデル化し、各準位間の純位相緩和も取り入れた。また、本研究ではアンサンブル NV サンプルを用いるため、NV センターのゼロ磁場分裂 D_{gs}' 、歪 E_x' 、RF 振幅]に対し不均一性を考慮した。

【結果】 まず、Lindblad マスター方程式を用いたモデル(LB)の弱 MW 下での近似解が調和振動子モデル(HO)と一致することを確認した(Fig. 1(b))。これを利用して、弱 MW 下での測定データを近似解(調和振動子モデル)でフィッティングすることにより D_{gs}' , E_x' の不均一幅を推定した。次に、(中強度以上の)MW 強度や RF 強度を変化させながら取得した ESDR スペクトルを不均一性を考慮した上記モデルでフィッティングし、得られたパラメータから MW 周波数を固定し、RF 強度を変化させた場合のコントラストの振る舞い(シグナル)を計算したところ(Fig. 1(c))、調和振動子モデルでは再現できなかった中強度以上の MW 下で特異に起こるコントラストの一時的な向上を再現することができた。この直観に反する現象は、RF 印加による MW 非共鳴準位へのポピュレーションの移動が原因であると考えられる。また、この現象の理解は ESDR による RF 測定精度・感度の向上や、理論面からの RF 測定条件最適化に用いることができるため、重要となる。

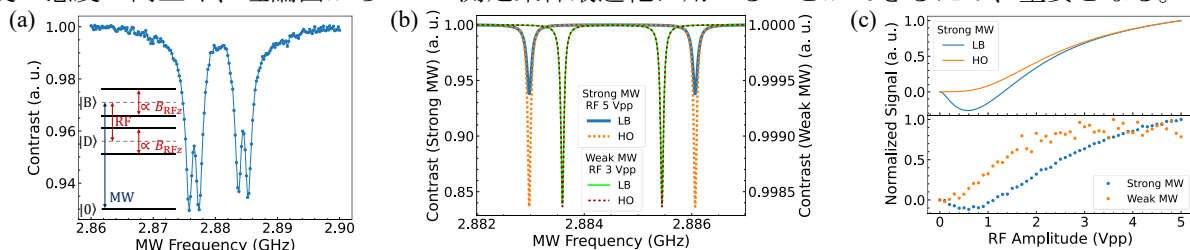


Fig. 1 (a) Experimental ESDR spectrum and energy diagram. (b) Comparison of two models under strong / weak MW. (c) (Lower) Experimental Signal under strong / weak MW. (Upper) Signal reproduced by two models under strong MW.

本研究の一部は、Q-LEAP (No. JP-MXS0118067395)、科研費 (No. 20H05661, 22H01558)、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。

[1] S. Saijo, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **113**, 082405 (2018). [2] T. Yamaguchi, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, 100901 (2019).

[3] H. Tabuchi, *et al.*, J. Appl. Phys. **133**, 024401 (2023). [4] T. Mikawa, *et al.*, Phys. Rev. A (in press).

[5] D. Manzano, AIP Adv. **10**, 025106 (2020).

ダイヤモンド量子センサの連続光励起 Ramsey 法による高感度化

Sensitivity improvement of Diamond Quantum Sensors by Continuously Excited Ramsey Method

東工大¹, [○](M2) 荒木裕太¹, (D1) 藤崎伊久哉¹, (B4) 李則含¹, 波多野雄治¹, 関口武治¹,
岩崎孝之¹, 波多野睦子¹

Tokyo Tech¹, [○]Yuta Araki¹, Ikuya Fujisaki¹, Li Zehan¹, Yuji Hatano¹, Takeharu Sekiguchi¹,
Takayuki Iwasaki¹, Mutsuko Hatano¹

E-mail: araki.y.aj@m.titech.ac.jp

ダイヤモンド中の窒素-空孔欠陥(NV センタ)は、室温で動作可能な磁場センサとして、生体磁場計測等への応用が報告されている[1]。ヒトの脳磁計測に応用するにはサブ pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ の磁場感度が必要であるが、Continuously Excited (CE) Ramsey は、CW-ODMR よりも高感度な磁場計測の可能性がある[2]。CE-Ramsey は、NV センタを光で励起しながら磁場信号を蓄積させるため、光によるスピン偏極が起こり、量子力学的なダイナミクスが複雑である(Fig. 1)。本研究では、CE-Ramsey の感度に直接影響するコントラストと位相緩和がレーザーパワーおよびロックイン周期によりどのように変化するかを明らかにし、高感度化への指針を得ることを目的とする。

7準位モデルの CE-Ramsey シミュレーションから、レーザーパワーを大きくすると、発光レートが増加する一方で、光初期化により位相緩和レートの増加とコントラストの減少が起きることが予測される。ロックイン周期を短くすると、オーバーヘッド時間が短縮される一方で、スピンの初期化が不十分になるためコントラストは減少する。したがって、CE-Ramsey においては、これらの感度パラメータの最適点が存在する。依存性を実験から明らかにするために、ダイヤモンド試料 (HPHT, NV⁻濃度 0.06 ppm) に対して直径 20 μm のレーザー光を照射し、入射光パワーに対する蛍光強度の飽和曲線を得た(Fig. 2)。さらに入射パワーを変えて CE-Ramsey 測定を行ったところ光初期化による位相緩和レートの増加が見られ、シミュレーションとの定性的な一致を示した(Fig. 3)。更にロックイン周期調整によるコントラスト最大化も組み合わせることで、光ショットノイズ限界感度をスピン射影雑音限界に近づけることができ、高感度化が期待される。

本研究は MEXT, Q-LEAP(JPMXS0118067395)の支援を受けています。ダイヤモンド試料の作製は (NIMS) 寺地グループと (QST) 大島グループにご協力いただきました。

[1] K. Arai et al., *Commun. Phys.* **5**, 200 (2022). [2] C. Zhang et al., *Phys. Rev. Appl.* **15**, 064705 (2021).

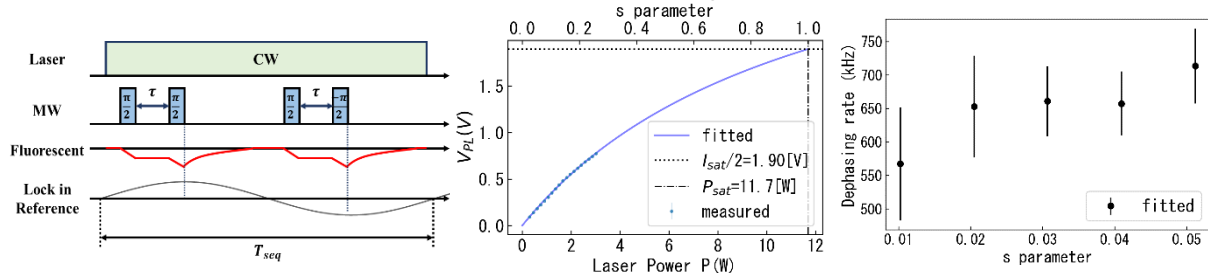


Fig. 1. CE-Ramsey pulse sequence.

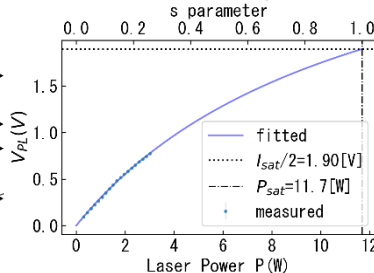


Fig. 2. Photoluminescence saturation behavior. $s = P/P_{\text{sat}}$.

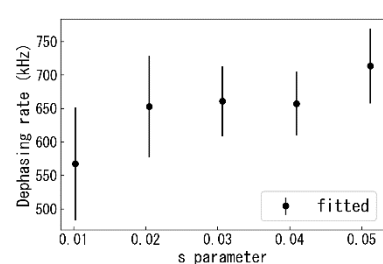


Fig. 3. s -parameter dependence of the dephasing rate in CE-Ramsey experiments.

NV 中心による二次元 NMR を目指した直交検波手法の開発

Quadrature detection method for two dimensional NV-NMR

京大化研¹, 量研², 金沢大³, 京大スピンセンター⁴

○(D3) 森田 航希¹, 大木 出^{1,2}, 徳田 規夫³, 水落 憲和^{1,4}

ICR, Kyoto Univ.¹, QST², Kanazawa Univ.³, CSRN, Kyoto Univ.⁴

○Kohki Morita¹, Izuru Ohki^{1,2}, Norio Tokuda³, Norikazu Mizuochi^{1,4}

E-mail: morita.koki.22v@st.kyoto-u.ac.jp

核磁気共鳴分光法(NMR)は、生体分子を生体系が生きたまま測定可能な数少ない構造解析手法である。反面感度が低く、測定に多量の試料を必要とするため、単一細胞など局所的な測定は困難であった。そこで近年注目されているのがダイヤモンド中の窒素-空孔(NV)中心であり、量子センサとしてNMRのプロブに用いることで極少量試料からの構造解析を可能にしつつある。NV 中心は室温下で超高感度かつ超高空間分解能な磁場センサとして利用可能であり、単一分子や単一プロトンの NMR 信号検出、ヒト単一細胞と同様のピコリットルスケールの試料からの構造解析も実証されている[1]。我々の研究室でも、新規量子センシング手法を考案し、NV 中心を用いた NMR で世界最小線幅を実証していた[2]。先行研究における手法

の課題として、ヘテロダイン検波を元にしてしているものの、単相検波であることが挙げられる。したがって、基準周波数からのずれが測定値として得られるが、高低どちらにずれているかは原理的に不明である。NMR においては構造情報を割り出すために周波数の絶対値が必要であり、市販の NMR 装置ではすべて直交検波が行われている。また、より複雑な分子の分析で必要不可欠な多次元 NMR と呼ばれる核種の相関測定では、目的信号の抽出のために「位相回し」という直交検波を応用した手法が使用される。NV 中心を用いた NMR では測定した時点でヘテロダイン検波されており、直交検波を導入するためには量子測定手法そのものを新たに開発する必要があった。

そこで本研究では、受信機位相を任意に設定可能な量子測定手法を新たに考案した。これにより、NV 中心を用いた極少量 NMR(NV-NMR)において初めて直交検波が可能となり、更に従来 NMR において使用される全ての位相系手法の NV-NMR への導入が実現する。まず、交流磁場測定を行い直交検波を実証した(Fig.1)。またわずかな位相、振幅ずれによる誤差を修正する CYCLOPS として知られる位相系手法を導入して補正を検証した。更に、二次元 NMR での位相回しによるコヒーレンス選択を行い、シミュレーション結果との比較も発表予定である。

この研究は JSPS 科研費 (N. 21H04653, 22J15804, 22KJ1907)、及び京都大学化学研究所の国際共同利用・共同研究(grant # 2023-85)の支援を受けています。

[1] I. Lovchinski et al. *Science* (2016). ; K. S. Cujia et al. *Nature* (2019).; D. R. Glenn et al., *Nature* (2018).

[2] E. D. Herbschleb, Y. Ohki, K. Morita, Y. Yoshii, H. Kato, T. Makino, S. Yamasaki, N. Mizuochi, *Physical Review Applied*, (2022).

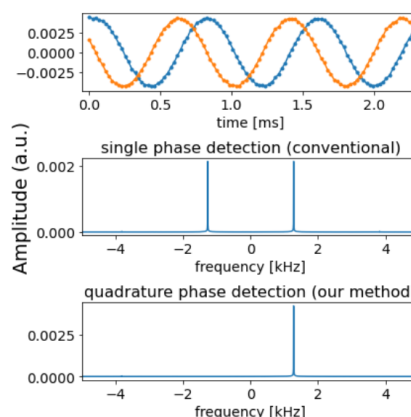


Figure 1: Detected oscillation by using novel method and fourier transform of single phase and quadrature phase

Coherence-based quantum sensing of low-frequency fields

Kyoto Univ.¹, QST², Sumida Corp.³, AIST⁴, Kanazawa Univ.⁵,

○Ernst David Herbschleb¹, Izuru Ohki², Kohki Morita¹, Yoshiharu Yoshii³,
Hiromitsu Kato⁴, Toshiharu Makino⁴, Satoshi Yamasaki⁵, Norikazu Mizuoichi¹

E-mail: herbschleb@dia.kuicr.kyoto-u.ac.jp

For a broad range of applications, high sensitivity and resolution give quantum sensing an important edge. Given its operation under ambient conditions, nitrogen-vacancy centres are considered suitable quantum sensors for example for medical applications. Measuring nuclear magnetic resonance (NMR) spectra of molecules is one example. Fourier-based algorithms have been implemented for measuring such NMR signals [1]. However, their limitation is in the frequency range: it works at high frequencies only (over ~ 1 kHz) since dynamical decoupling sequences are applied. On the other hand, studying low-frequency signals is important for chemical structure analysis [2] and for searching new particles beyond the standard model [3].

In earlier studies, optically detected magnetic resonance techniques were used to detect low-frequency signals [4], which are not as sensitive as coherence-based methods [5]. Here, we demonstrate a fitting-based algorithm to measure low-frequency fields with an over two orders of magnitude higher sensitivity, which is frequency independent in the low-frequency range [6]. Besides in-depth simulation and measurement of the fundamental properties of our algorithm, we study the possibility to measure at ultra-low fields, essential for example for low-field NMR, as well. Finally, as proof-of-concept measurement, we detect low-frequency NMR signals, giving a narrow line width for the free nuclear precession of water of 1.6 Hz.

- [1] D. R. Glenn et al., High-resolution magnetic resonance spectroscopy using a solid-state spin sensor, *Nature* 555, 351-354 (2018).
- [2] D. A. Barskiy et al., Zero-field nuclear magnetic resonance of chemically exchanging systems, *Nature Communications* 10, 3002 (2019).
- [3] S. Chigusa et al., Light dark matter search with nitrogen-vacancy centers in diamonds, arXiv:2302.12756 (2023).
- [4] C. Zhang et al., Diamond magnetometry and gradiometry towards subpicotesla dc field measurement, *Physical Review Applied* 15, 064075 (2021).
- [5] A. Dreau et al., Avoiding power broadening in optically detected magnetic resonance of single NV defects for enhanced dc magnetic field sensitivity, *Physical Review B* 84, 195204 (2011).
- [6] E. D. Herbschleb et al., Low-frequency quantum sensing, *Physical Review Applied* 18, 034058 (2022).

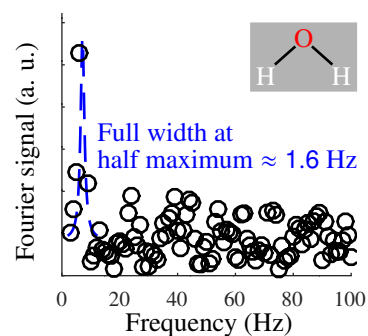


Figure 1: Fourier transform of a measured low-frequency NMR signal of water (data with circles, Lorentzian fit with blue dashed line) giving a full width at half maximum of 1.6 Hz.

Acknowledgements

The research is supported by JST OPERA (No. JPMJOP1841), KAKENHI (No. 21H04653) and the Collaborative Research Program of ICR, Kyoto University (2023-86).

高感度小型化に向けたダイヤモンド NV 磁気センサヘッド

Diamond NV magnetometer sensor head for high sensitivity and miniaturization

東工大¹, 株式会社デンソー², 産総研³, 量研⁴, ◯貝沼 雄太¹, 波多野 雄治¹, 柴田 貴行²,
加藤 宙光³, 小野田 忍⁴, 大島 武⁴, 波多野 睦子^{1,4}, 岩崎 孝之¹

Tokyo Tech¹, DENSO CORPORATION², AIST³, QST⁴, ◯Yuta Kainuma¹, Yuji Hatano¹,

Takayuki Shibata¹, Hiromitsu Kato¹, Shinobu Onoda¹, Takeshi Ohshima¹, Mutsuko Hatano¹,

Takayuki Iwasaki¹,

E-mail: kainuma.y.aa@m.titech.ac.jp

ダイヤモンド中の窒素-空孔 (NV) 中心は優れた磁場感度を有することから磁気センサとして応用が進んでいる[1]。社会実装のためにはセンサの高感度かつ小型化を実現することが重要である。集光率および NV 中心の励起体積の向上は磁場感度向上の課題の一つである。本研究はダイヤモンド基板側面より NV 中心を連続波法により励起し、高い集光率を可能とする複合放物面型集光器(CPC)を有するダイヤモンド NV 磁気センサヘッド作製し、その磁気感度を評価した。

NV 中心は、¹²C 濃縮した CVD 層に電子線($5 \times 10^{17} / \text{cm}^2$)を照射し、真空中で加熱(1000°C , 2 時間)することで生成した。ダイヤモンド基板は CPC の先端に光学接着剤で固定した(Fig. 1(a), (b-i))。ダイヤモンド基板側面から偏光制御したレーザを照射し (Fig. 1(b-ii))、ダイヤモンド中の NV 中心を励起し、フォトダイオード(PD) で蛍光を検出した(Fig. 1(b-iii))。外部磁場はダイヤモンドの結晶軸[111]方向に調整した。[111]方向の NV 中心の低周波側と高周波側に共鳴周波数を合わせ、ロックインアンプの出力から磁場ノイズを計測した[2]。検出した蛍光電流(約 4.0 mA)は先行研究の光ファイバ先端に実装する方法[2]に比べて約 80 倍向上を示した。磁気感度評価から、磁場ノイズ(magnetic sensitive)およびレーザノイズ(magnetic insensitive)のフロアレベルは約 $38 \text{ pT}/\sqrt{\text{Hz}}$ および約 $22 \text{ pT}/\sqrt{\text{Hz}}$ であり、ショットノイズ限界は約 $19 \text{ pT}/\sqrt{\text{Hz}}$ と見積もられた(Fig. 1(c))。また、ダイヤモンド基板側面に蛍光が明るい領域(Fig. 1(b-iii))が観測されているため、今後、CPC へ蛍光を誘導することで集光効率および磁気感度のさらなる向上が期待できる。これらの結果から本研究で開発したセンサヘッドの構成は高感度な磁気センサヘッド実現の可能性が示唆された。本研究は文部科学省光・量子飛躍フラグシッププログラム(Q-LEAP) JPMXS0118067395 の助成を受けています。

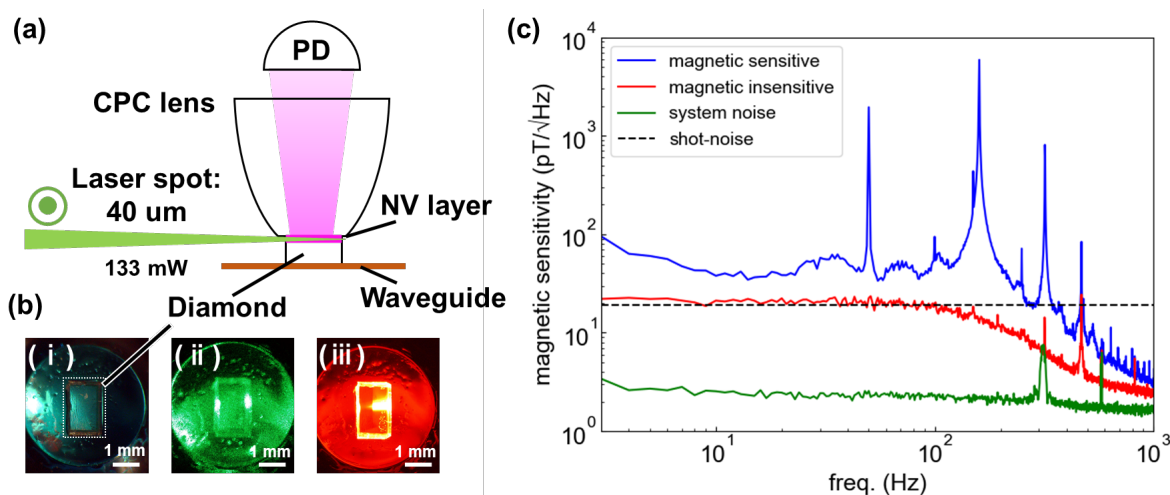


Figure 1: Diamond NV magnetometer with CW method.

(a) Schematic of a diamond sensor head, (b) Optical image of diamond sensor. (i) without laser, (ii) with laser, and (iii) fluorescence image from NV diamond (c) Magnetic sensitive and insensitive noise spectra. Measurements were performed in a one-layer magnetic shield.

[1] K. Arai et al., Commun. Phys. **5**, 200 (2022). [2] Y. Hatano et al., Appl. Phys. Lett. **118**, 034001 (2021).

EV 電池電流計測用のダイヤモンド量子センサのロバスト性実証 Verification of Robustness in Electric Vehicle Battery Monitoring with Diamond Quantum Sensor

東工大¹, 矢崎総業(株)², 量研³, ○波多野雄治¹, 谷川純也², 中園晃充², 関口武治¹,
貝沼雄太¹, 阿部浩之³, 小野田忍³, 大島武³, 岩崎孝之¹, 波多野睦子^{1,3}

Tokyo Tech¹, YAZAKI Corp.², QST³, ○Yuji Hatano¹, Junya Tanigawa², Akimichi Nakazono²,
Takeharu Sekiguchi¹, Yuta Kainuma¹, Hiroshi Abe³, Shinobu Onoda³, Takeshi Ohshima³,
Takayuki Iwasaki¹, Mutsuko Hatano^{1,3}

E-mail: hatano.y.aa@m.titech.ac.jp

電動車(EV)における電池モジュールの充放電電流を高精度かつ広いダイナミックレンジで計測可能なダイヤモンド量子センサを提案してきた[1]。一方、実際の車載ノイズ環境下で計測が可能なのも実証必要である。EV車の電池モジュール周辺の磁場雑音を模した80 μ Tの磁場雑音の中でも動作可能なことを確認したので報告する。

実験に使用したダイヤモンド量子センサは、 $2 \times 2 \times 1 \text{ mm}^3$ のHPHT-Ib(111)結晶に $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ の電子線照射及び1000 $^{\circ}\text{C}$ 2時間のアニールを行ったものであり、5~6 ppmのNV⁻濃度を有する。このダイヤにコア径400 μm のマルチモードファイバを接着し、励起光入力・蛍光検出を行う[1]。差動計測は、バスバの上下にセンサA、Bを配置することで実現する(Fig.1(a))。センサA、Bでは[111]のNV軸の高周波側および低周波側の二つの共鳴周波数 R_H 、 R_L の差(Resonance Frequency Difference (RFD) $\equiv R_H - R_L$)の変化($\Delta RFD = \Delta(R_H - R_L)$)として磁場を検出することができる(Fig.1(b))。センサA、B対の差動出力 $\Delta RFD_B - \Delta RFD_A$ として外部磁場雑音を同相雑音として除く。このセンサA、B対に印加する外部磁場雑音を変化させた時の差動出力を計測した(Fig.2)。バスバには1 Aから1 mAまでの異なる振幅の電流パルス列を10 s オン-5 s オフの間隔で印加した(Fig.2(a))。外部磁場は計測開始後470 sまでは印加せず、470 sより80 μT_{pp} を周期10 sの正弦波で印加する(Fig.2(b))。センサA、B対の差動出力 $\Delta RFD_B - \Delta RFD_A$ として、外部磁場が無い場合には10 mAの電流パルスを検出可能であるが、外部磁場80 μT_{pp} の環境下であっても、20 mAと10 mAの電流パルスは識別可能であることを確認した。A、Bのセンサ単独では外部磁場印加時には数百mAの電流パルスも識別困難であるため、今回開発した差動計測の有効性が示された。

なお、それぞれのセンサは $-150^{\circ}\text{C} \sim +150^{\circ}\text{C}$ の範囲で一定の感度を有することが示されている[2]。これらによりEV車電池電流計測用ダイヤモンド量子センサのロバスト性が実証されたと考える。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の助成を受けています。

[1] Y. Hatano et al., Sci. Rep. **12**, 13991 (2022). [2] K. Kubota et al., Diam. Relat. Mater. **135** 109853 (2023).

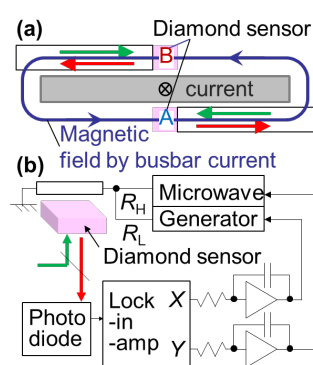


Fig. 1 EV battery monitor to measure busbar current. (a) Dual diamond sensor for differential detection. (b) Control circuit to detect busbar current as relative resonance frequency difference ΔRFD .

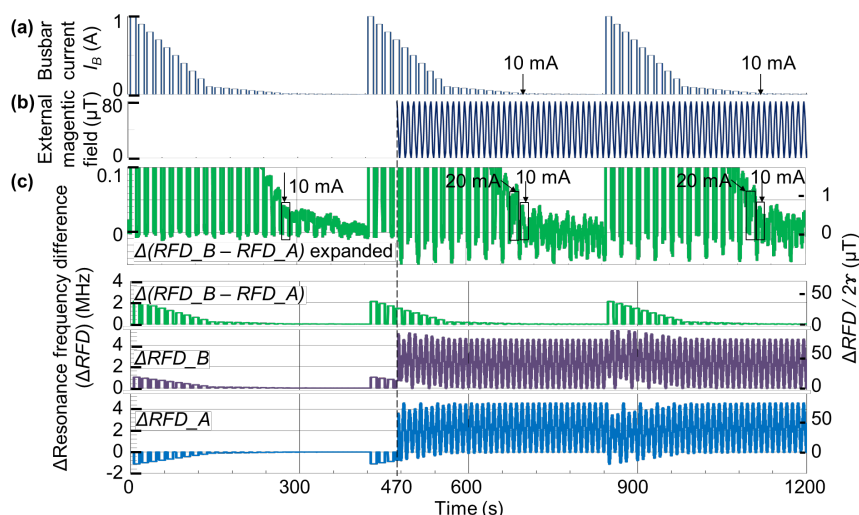


Fig. 2 Suppression of magnetic field noise effect by differential detection. (a) Current pulse train from 1 A to 1 mA. (b) 80- μT_{pp} 0.1-Hz magnetic field noise starting at 470 s. (c) Diamond sensor output as relative resonance frequency difference ΔRFD .

ラット脳磁検出に向けた高感度ダイヤモンド量子センサシステムの構築

Developing a sensitive diamond quantum sensor system

for detecting the brain magnetic field of a living rat

東工大¹, 東大², NIMS³, QST⁴, °吉村 厚美¹, 関口 直太¹, 伏見 幹史², 北田 純大¹,
眞榮 力³, 宮川 仁³, 谷口 尚³, 寺地 徳之³, 小野田 忍⁴, 大島 武⁴,
関野 正樹², 岩崎 孝之¹, 波多野 睦子¹

Tokyo Tech.¹, Univ. of Tokyo², NIMS³, QST⁴, °Atsumi Yoshimura¹, Naota Sekiguchi¹, Motofumi
Fushimi², Atsuhiko Kitada¹, Chikara Shinei³, Masashi Miyakawa³, Takashi Taniguchi³,
Tokuyuki Teraji³, Shinobu Onoda⁴, Takeshi Ohshima⁴, Masaki Sekino², Takayuki Iwasaki¹,
Mutsuko 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微小磁場を室温で測定が可能のほか空間分解能も高いという利点があり、生体磁場測定への応用に向けた研究が盛んに行われている[1, 2]。特に脳磁の測定は医療診断や脳機能の理解といった応用で極めて重要である。しかし、磁場感度は脳磁の測定にまだ十分でなく、さらなる高感度化が求められており、さらに実際の生体磁場測定に適した系の開発も課題である。本研究では、ラット脳磁検出を目標に、生きているラットの頭に近づけられる非侵襲で高感度なダイヤモンド量子センサを開発した。

Figure 1 に測定系の模式図を示す。NV 中心を含む HPHT ダイヤモンド[3]を麻酔をかけたラットの頭上に設置し、532 nm のレーザー光を入射しダイヤモンドからの蛍光を PD に集光した。レーザー光を参照用 PD_{ref}に入射し、蛍光用 PD との出力電流の差分をとって光強度ノイズを低減した。

実際の生体測定ではラットに刺激を与えて脳磁を誘発し、刺激に合わせて信号を積算する。誘発脳磁の帯域である数 Hz から数十 Hz において、ラットがいない状態ではあるが 30 pT Hz^{-1/2} より高い磁場感度を得た(Fig. 2)。30 から 80 Hz では 17 pT Hz^{-1/2} のノイズフロアである。誘発脳磁はセンサ位置で 1 から 10 pT と見積もられ、2 Hz の刺激に誘発された 10 pT の磁場であれば帯域 50 Hz にて約 1 分の積算で検出可能と見込まれる。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。

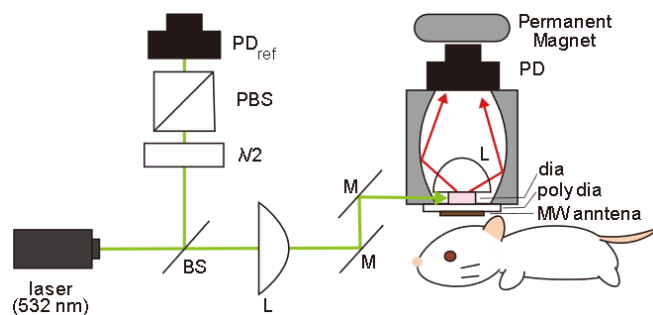


Fig. 1 Diamond quantum sensor system.

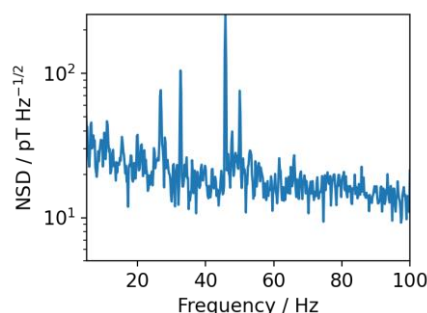


Fig. 2 Noise spectrum.

- [1] J. F. Barry *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. **113**, 14133 (2016). [2] K. Arai *et al.*, Comm. Phys. **5**, 200 (2022).
[3] M. Miyakawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **61**, 045507 (2022).

ダイヤモンド NV センター光検出磁気共鳴スペクトルの RF 電磁波照射効果とその空間分布

Mapping of the RF field by optically detected magnetic resonance in diamond NV centers

筑波大数理物質¹, 産総研², 名古屋大工³

大久保 義克¹, 小野寺 駿太¹, 中川 茉莉¹, 東 勇佑¹,

渡邊 幸志², 柏谷 聡³, 野村 晋太郎¹

Univ. of Tsukuba¹, AIST², Nagoya Univ.³

°Yoshiktsu Ohkubo¹, Syunta Onodera¹, Mari Nakagawa¹, Yusuke Azuma¹,

Hideyuki Watanabe², Satoshi Kashiwaya³ and Shintaro Nomura¹

E-mail: s2320159@u.tsukuba.ac.jp

ダイヤモンド中の負電荷を持つ窒素-空孔(NV) センター中は、室温で長い量子コヒーレンス時間を持ち、高感度の RF 電磁波センサーとしても注目されている[1-3]。今回私たちは、ダイヤモンド NV センターに RF 電磁波を照射し、光検出磁気共鳴スペクトルの RF 照射効果を調べ、その空間分布を得た結果について報告する。

¹⁵Nをドーブした CVD 成長高品質ダイヤモンド NV センター試料にマイクロ波パルスとレーザーパルスと RF 電磁波を照射して、光検出磁気共鳴スペクトル(ODMR)を取得した。NV センターからの発光は sCMOS カメラでイメージとして取得した。図 1 に RF 4 MHz を照射した場合の ODMR スペクトルを示す。2.755 GHz と 2.758 GHz の 2 つのディップは¹⁵Nの超微細相互作用による分裂である。そのほか、この 2 つのディップから 4 MHz の整数倍離れたディップが見られる。これらの振幅は、RF 電磁波の振幅に依存して変化する。文献[1,2]のモデルに従って解析を行った。ローレンツ関数へのフィットで得たディップの線幅はほぼ一定で、ディップの振幅はベッセル関数を用いて表される。この解析から RF 電磁波のラビ振動数は、図の場合 1.77 MHz が得られた。さらに、サイドバンドの振幅の空間マッピングから RF 電磁波の振幅の空間分布が得られた。この手法は簡便で定量的な RF イメージング法として有用である。

図 1 に RF 4 MHz を照射した場合の ODMR スペクトルを示す。2.755 GHz と 2.758 GHz の 2 つのディップは¹⁵Nの超微細相互作用による分裂である。そのほか、この 2 つのディップから 4 MHz の整数倍離れたディップが見られる。これらの振幅は、RF 電磁波の振幅に依存して変化する。文献[1,2]のモデルに従って解析を行った。ローレンツ関数へのフィットで得たディップの線幅はほぼ一定で、ディップの振幅はベッセル関数を用いて表される。この解析から RF 電磁波のラビ振動数は、図の場合 1.77 MHz が得られた。さらに、サイドバンドの振幅の空間マッピングから RF 電磁波の振幅の空間分布が得られた。この手法は簡便で定量的な RF イメージング法として有用である。

[1] S. Ashhab, J. R. Johansson, A. M. Zagoskin, and Franco Nori, Phys. Rev. A **75**, 063414 (2007).

[2] L. Childress and J. McIntyre, Phys. Rev. A **82**, 033839 (2010).

[3] S. Nomura, K. Kaida, H. Watanabe, and S. Kashiwaya. J. Appl. Phys., **130**, 024503, (2021).

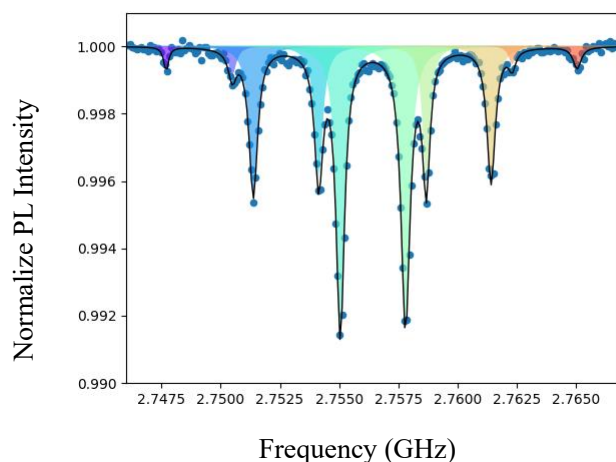


図 1: RF 4 MHz 照射下における光検出磁気共鳴スペクトル

ダイヤモンド量子センサを用いたパワーエレ用軟磁性薄膜の 磁化過程のイメージング

Imaging of magnetization dynamics of soft magnetic thin film for power electronics by diamond quantum sensors

○(D)北川 涼太¹, 永田 俊典¹, 孝橋 照生², 中司 碧¹, 辻 越行¹, 仁田 帆南¹, 水野 皓介¹,
高村 陽太¹, 岩崎 孝之¹, 中川 茂樹¹, 波多野 睦子¹ (1. 東工大, 2. 日立製作所)

○Ryota Kitagawa¹, Shunsuke Nagata¹, Teruo Kohashi², Aoi Nakatsuka¹, Takeyuki Tsuji¹,
Honami Nitta¹, Kosuke Mizuno¹, Yota Takamura¹, Takayuki Iwasaki¹, Shigeki Nakagawa¹,
and Mutsuko Hatano¹ (1. Tokyo Tech., 2. Hitachi, Ltd.)

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

近年、パワーエレクトロニクス回路において大容量化とキャリア周波数の高周波化の需要が高まっているものの、重要な受動素子であるインダクタなどに使われる軟磁性材料の高周波における鉄損が大きいために高周波動作化のボトルネックとなっている[1]。低鉄損の軟磁性材料の開発には、磁化-磁場特性の空間分布から計算される鉄損の空間分布を計測し、磁壁移動や材料中の欠陥などの局所的な要因との相関を明らかにすることは有効である。そこで、我々が構築してきた幅広い周波数レンジ(DC, 1 kHz-10 MHz)、高空間分解能(~500 nm)で磁場の強度・位相同時イメージングが可能なダイヤモンド量子センサ[2]を、磁化-磁場特性のイメージングに適用することを目的とした。本研究では、直流におけるダイヤモンド量子センサを用いたパワーエレ用軟磁性薄膜の磁化過程のイメージングについて報告する。

ナノ磁性粒子が絶縁体マトリックス中に分散した構造に由来する導電率の低さから、高周波用軟磁性薄膜として開発されている CoFeB-SiO₂ 薄膜[3]の磁化過程を、高感度に磁場イメージングが可能な[111]完全配向窒素-空孔(NV)センサ[4]を用いて計測した(Fig. (a)). 対向ターゲット式スパッタリングによって熱酸化 Si 基板上に CoFeB-SiO₂ 薄膜が 150 nm 堆積された。化学気相合成法によって Ib (111)ダイヤモンド基板上に膜厚 1 μm の [111]完全配向 NV センサが製膜された。NV センサは CoFeB-SiO₂ 層の直上に配置された。電磁石によって CoFeB-SiO₂ 薄膜に印加する磁場を変えながら、光検出磁気共鳴イメージング像を撮影した。比較のため類似の条件で磁気光学カー効果(MOKE)イメージング像も撮影した。

印加磁場に対して磁場像は大きく変化した(Fig. (b)). +(-) 10 Oe 以上印加時は正(負)の磁気飽和が見られた。0 Oe の時は磁化履歴に依存しエッジの磁極の符号が変化した。さらにこの時エッジから膜の内側に細く伸びる模様が観察された。同様の条件・視野で撮影した MOKE 像でもエッジから三角形に伸びる逆磁区が観察された(Fig. (c)). 2つの像で、逆磁区の密度はおおよそ 9 個/100 μm, 長さは 30 μm 程度と逆磁区の特徴が一致した。一方で、ダイヤモンドセンサで撮影した像は逆磁区の先端が強調されている。これは、磁区の先端に磁極が集中しているためだと考えられる。

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、JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム JPMJSP2106 の助成を受けたものです。

[1] J. M. Silveyra et al., *Science* **362**, 6413 (2018) [2] K. Mizuno et al., *Sci. Rep.* **10**, 1 (2020)

[3] Y. Takamura et al., *IEEE Trans. Magn.*, to be published in 2023. [4] T. Tsuji et al., *Diam. Relat. Mater.* **123**, 108840 (2022).

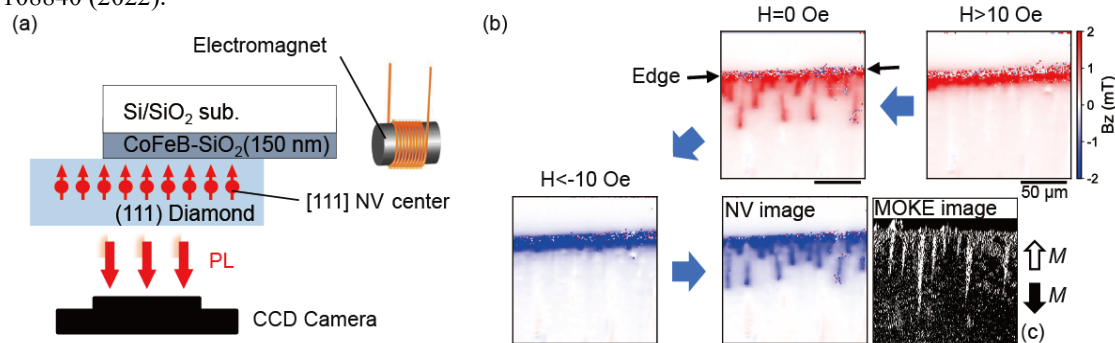


Fig. (a) Experimental setup. (b) Magnetization-magnetic field characteristics imaged by diamond quantum sensor. (c) MOKE image at H=0 Oe. Black and white arrow indicate the directions of the magnetization.

ODMR 法を用いた温度測定のロックイン検出法による高感度化

High Sensitivity of Temperature Measurement

using ODMR Method with Lock-in detection Method

金沢大 ○(M1)河合 勝太郎, 示野 義和, 長尾 祥亮, 桑村 有司, 丸山 武男

Kanazawa Univ. °S. Kawai, Y. Shimeno, Y. Nagao, Y. Kuwamura, and T. Maruyama

E-mail: best96@stu.kanazawa-u.ac.jp

【はじめに】

近年、高感度磁気センサーとしてダイヤモンド NV センターによる光検出磁気共鳴(ODMR)が盛んに研究されている。ダイヤモンド NV センターでは波長 532 nm で励起すると波長 637 nm 付近に NV センターに起因するピークが観測できる。この NV センターに 2.87GHz のマイクロ波を照射することで共鳴吸収が生じ、外部磁界により吸収周波数が分裂する。この分裂幅は磁界強度に比例するため、分裂幅を測定することで磁界強度が測定できる。さらに共鳴周波数の変動を測定することで温度が測定できる。

これまでに測定の高感度化を目指しマイクロ波源にロックイン法を導入し磁界強度を測定した[1]。今回、同手法で温度測定を試みたので、以下に報告する。

【実験方法】

Fig. 1にODMR測定システムを示す。励起レーザー(波長532 nm)をダイクロイックミラーを介してNVセンター試料に入射する。NVセンターによる発光はDMで反射しPDで検出する。またDMで反射後のロングパスフィルターは励起光をカットするために挿入している。マイクロ波はアンテナから照射する。このマイクロ波信号を5kHzでAM変調し、ロックインアンプでPDからの信号と同期させた。

【結果と考察】

Fig. 2 にロックインアンプから得られた差分信号のマイクロ波周波数依存性を示す。ヒーター温度を 20°C から 60°C に変化させることで、2.87GHz 付近の NV センターに起因するピークの変化が得られた。また共鳴周波数の温度変化を Fig. 3 に示す。本測定系において温度測定が可能であることがわかった。

【まとめ】

ロックイン法を用いた ODMR 法による温度センサー測定系を構築し、共鳴周波数の温度依存性を観測した。

【参考文献】

[1] 示野ら, 第 70 回応物春, 16p-A408-15, 2023.

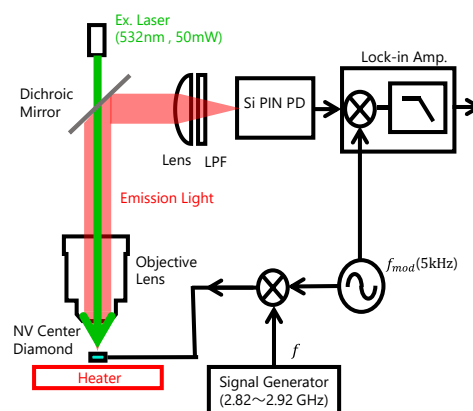


Fig. 1 Measurement System.

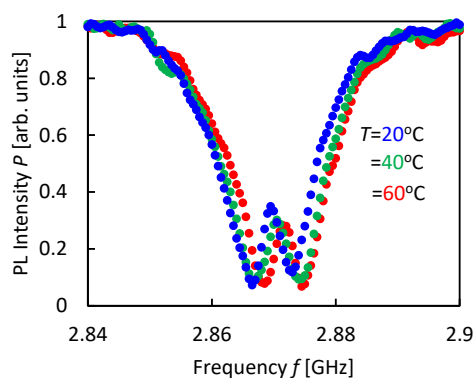


Fig. 2 Microwave frequency dependence of PL intensity.

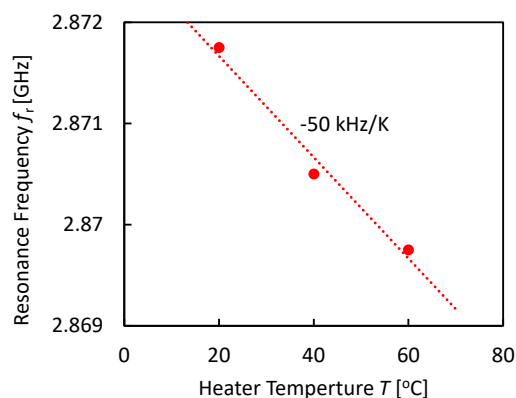


Fig. 3 Temperature dependence of resonance frequency.

効率的な IV 族-V センター形成のための熱処理時間依存性評価

Evaluation of Annealing Time Dependence for Efficient Creation of Group IV-V Center

群馬大¹, 量研², 横国大 QIC³, 物材機構⁴

○(M2) 馬場智也^{1,2}, 小野田忍^{2,3}, 木村晃介^{1,2}, 加田渉¹, 谷口尚⁴, 宮川仁⁴, 大島武², 花泉修¹

°Gunma Univ.¹, QST², YNU-QIC³, NIMS⁴

°Tomoya Baba^{1,2}, Shinobu Onoda^{2,3}, Kosuke Kimura^{1,2}, Wataru Kada¹, Takashi Taniguchi⁴,

Masashi Miyakawa⁴, Takeshi Ohshima², Osamu Hanaizumi¹

E-mail: t221d069@gunma-u.ac.jp, baba.tomoya@qst.go.jp

[はじめに]

ダイヤモンド中の蛍光欠陥である窒素-空孔(NV: Nitrogen-Vacancy)センターは、量子情報デバイスや量子センサへの応用が注目されている。NV センター以外にも、IV 族イオンのシリコン(Si)、ゲルマニウム(Ge)、スズ(Sn)と原子空孔(V)で構成された蛍光欠陥(IV 族-V センター)も量子情報デバイスへの応用が期待されている。IV 族-V センターは、ゼロフォノン線(ZPL: Zero Phonon Line)からの発光が数十パーセント以上もあり、NV センターの ZPL(約 4%)と比べて高効率であるために、容易に観察可能な単一光子源として量子情報通信応用へ向けた研究が進められている¹。それに加えて、極低温においてミリ秒単位の長いスピン緩和時間が期待できるという点で、NV センターと同様に量子情報デバイスへの応用にも期待が集まる^{1,2,3}。IV 族-V センター形成するためには、イオン注入時に形成された空孔を IV 族イオンと結合させるための高温熱処理が必要である。しかし、IV 族-V センター形成のための熱処理条件に関する研究は十分とは言えない。そこで我々は、IV 族-V センターを形成するための熱処理プロセスに着目し、高速昇温可能な高温熱処理装置を使用して熱処理時間依存性評価を行い、効率的な IV 族-V センター形成条件を調べた。

[実験及び結果]

本研究では、高温高圧(HPHT)ダイヤモンド試料を用いた。Si、Ge、及び Sn イオンを 3MV タンデム加速器により 18 MeV で加速させ、試料表面からの深さ約 3 μm に注入した。次に、Ar 中で高速熱処理 (RTA: Rapid Thermal Annealing) 炉を用いて熱処理を施した。熱処理プロセスは次の通りである。まず、1 分で 300°C に昇温し、300°C を 10 分保持、30 秒で 1750°C に昇温し、30 秒で 1800°C まで昇温させた。1800°C で 1 分~10 分で熱処理を行った。熱処理後、フォトルミネッセンス(PL: PhotoLuminescence)測定を行った。PL 測定は、堀場製作所の顕微レーザーラマン分光測定装置 LabRAM HR Evolution を使用し、532 nm のレーザー(CW)で測定を行った。熱処理と PL 測定を交互に繰り返すことにより熱処理時間と蛍光欠陥の PL 強度の関係性を調べた。

Fig.1 に 1800°C で 20 分の熱処理を行った試料の PL スペクトルを示す。IV 族イオンを注入したすべての試料において、それぞれの蛍光欠陥を形成することに成功した。Fig.2 に熱処理温度を 1800°C に固定した際の各蛍光欠陥からの PL 強度の熱処理時間依存性を示す。Si 注入試料では、1 分の熱処理で PL 強度が最大となった。Ge 注入試料では、10~20 分で PL 強度が最大となった。Sn 注入試料では、40 分で PL 強度が最大となった。すべての蛍光欠陥は PL 強度が最大になった後に減少した。1800°C の熱処理において、IV 族イオンの質量数が増加すると PL 強度の最大となる熱処理時間が長くなることが分かった。発表では、熱処理時間と IV 族-V センター形成の関係性について議論する。

[参考文献]

¹T. Iwasaki et al., PRL 119, 253601 (2017), ²L. Rogers et al., PRB 89, 235101 (2011),

³T. Iwasaki et al., Sci. Rep., 5, 12882 (2015)

[謝辞]

本研究は JST ムーンショット型研究開発事業・JPMJMS2062 の支援を受けた。

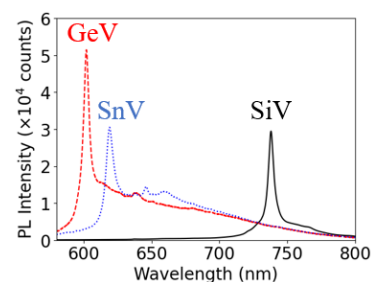


Fig.1 PL spectrum of SiV, GeV and SnV after annealing at 1800°C for 20 minutes in Ar ambient.

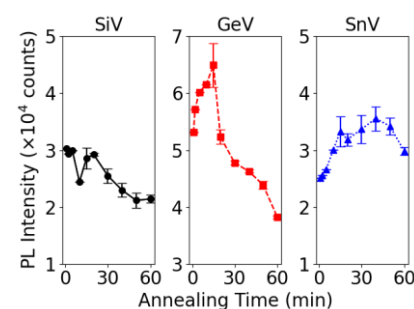


Fig.2 PL Intensity of SiV, GeV and SnV as a function of annealing time.

ダイヤモンド中のスズ-空孔センターの電荷状態ダイナミクス

Charge state dynamics of a tin-vacancy center in diamond

東工大¹, NIMS², QST³ ○(B) 陳溢暘¹, (M2) 池田啓太¹, (D3) 汪鵬¹, 谷口尚², 小野田忍³,
波多野睦子¹, 岩崎孝之¹

Tokyo Tech¹, NIMS², QST³ ○Y. Chen¹, K. Ikeda¹, P. Wang¹, T. Taniguchi², S. Onoda³,
M. Hatano¹, T. Iwasaki¹

E-mail: chen.y.be@m.titech.ac.jp

ダイヤモンド中のスズ-空孔 (SnV) センターは安定した発光および鋭いゼロフォノン線を示し、さらにケルビン温度での長いスピンコヒーレンス時間が予測されているため量子ネットワークへの応用が期待されている[1]。スピン-フォトンインターフェースでは、2準位間のエネルギーに一致する共鳴励起を行うが、負電荷状態の SnV は共鳴励起によって異なる電荷状態 (暗状態) に遷移することが分かっている[2, 3]。しかしながら、暗状態への遷移条件など、そのダイナミクスは明らかになっていない。本研究では、共鳴レーザーおよび非共鳴レーザーの照射時間・タイミングを制御することで、負電荷 SnV センターの光学的な電荷遷移について研究した。

加速エネルギー18 MeV のイオン注入および 2100 °C/7.7 GPa の高温高压アニールによって単結晶ダイヤモンド中に形成した SnV センター[4]を用いた。共鳴・非共鳴レーザーの照射タイミングは AOM を用いて制御し、SnV センターからの蛍光は APD およびタイムデジタルコンバーターで計測した。

Fig. 1 は、非共鳴レーザーによる電荷状態の初期化後に共鳴レーザーを照射したときの負電荷 SnV からの発光強度の時間依存性である。発光は 20 ms 間安定であるが、inset に示す通り、秒スケールでは時間とともに発光強度が減衰していることがわかる。一方、非共鳴レーザーを常時照射している状態で共鳴レーザーを加えるシークエンス[5]では、数 ms で急激に発光が減少することが分かった (Fig. 2)。これは共鳴レーザーのみならず、非共鳴レーザーによっても暗状態への遷移が促進される証拠であり、暗状態の制御や電荷ダイナミクスの解明につながるものである。

本研究は JSPS 科研費 JP22H04962、東レ科学振興会、文部科学省 Q-LEAP フラッグシッププログラム (No. JPMXS0118067395)、JST ムーンショット型研究開発事業 (JPMJMS2062) の助成を受けたものである。

[1] T. Iwasaki et al., Phys. Rev. Lett. 119, 253601, 2017. [2] J. Görlitz et al., npj Quantum Information, 8, 45, 2022. [3] 池田啓太 第 83 回応用物理学会秋季学術講演会 23p-A202-7 [4] Y. Narita et al., Phys Rev. Appl. 19, 024061, 2023. [5] D. Chen et al., Phys. Rev. Lett. 123, 033602, 2019.

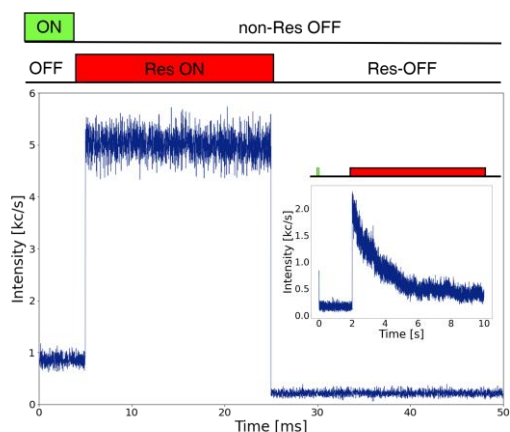


Fig. 1 Fluorescence from a negatively charged SnV under resonant excitation. Inset: longer time scale.

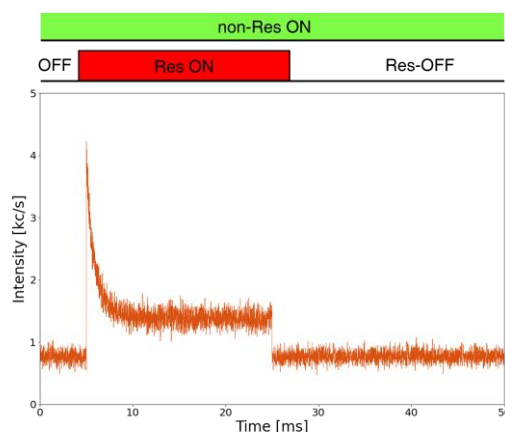


Fig. 2: Spontaneous exposure to resonant and non-resonant laser.

ダイヤモンド中の鉛一空孔センターのスピンの選択励起

Spin Selective Excitation of a PbV Center in Diamond

東工大¹, NIMS² (M2) 大羽一輝¹, Wang Peng¹, 谷口尚², 波多野睦子¹, 岩崎 孝之¹

Tokyo Tech¹, NIMS² (M2) K. Oba¹, P. Wang¹, T. Taniguchi², M. Hatano¹, T. Iwasaki¹

E-mail: oba.k.ab@m.titech.ac.jp

ダイヤモンド中のIV族一空孔カラーセンターは、反転対称性による外部ノイズ耐性や鋭いゼロフォノン線を有することから量子ネットワークへの応用が期待されている。その中でも鉛一空孔(PbV)センターは、最も大きい基底状態分裂幅を持つ[1]ことから、主なデコヒーレンス源とされるフォノンの影響を低減できることが予想されるため、より高い温度において長いスピンコヒーレンス時間が期待される。スピン特性評価には、磁場印加によるスピン状態のゼーマン分裂および基底-励起状態間でのスピン選択励起が必要となる。本研究では、磁場下でのPbVセンターの共鳴励起分光(PLE)により、スピン状態を選択した共鳴光学遷移を観測した。

PbVセンターは、IIa(001)単結晶ダイヤモンドにPbイオンを注入後、高温高压アニールを行い作製した。磁石は磁力方向が[100]となるよう設置し、サンプル表面で約60 mTの静磁場強度である。計測温度はクライオスタットにより8.8 Kから24.9 Kまで変化させた。狭線幅の波長可変レーザーによる励起波長掃引およびフォノンサイドバンドの蛍光検出によりPLE測定を行った。

PbVセンターは、スピン-軌道相互作用による分裂のために基底状態および励起状態がそれぞれ2つに分裂したエネルギー構造を有しており、ゼロ磁場下ではA-Dの4つの光学遷移が存在する(Fig. 1(a))。磁場印加により、スピン1/2のために縮退していたスピンレベルがゼーマン分裂することで、スピン状態を選択した光学遷移が可能となる。本研究では、蛍光強度の高いCピークに注目し計測を実施した。

Fig. 1(b)に各温度におけるPLEスペクトルを示す。観測されている2つのピークはFig. 1(a)のC2およびC3に対応しており、スピン状態を保存したスピン選択励起を示している。この2つのピークのエネルギー差(約400 MHz)は、基底状態と励起状態のゼーマン分裂のエネルギー差である。また、8.8 Kまで冷却を行うとこのピークが消失した。これは、スピン保存遷移で励起された電子がスピン反転により、暗状態へ存在確率が偏るためであると考えられる。高い温度の際には、フォノン吸収によるスピン緩和によって明状態の電子の存在確率が増加するためにピークが観測できる。この結果は、8.8 KにおいてPbVセンターの基底状態間でのフォノン吸収が抑制されていること示しており、今後のスピン特性評価において重要な知見となるものである。

本研究はJSPS 科研費JP22H04962、東レ科学振興会、文部科学省Q-LEAPフラッグシッププログラム(No.JPMX0118067395)の助成を受けたものです。

[1] P.Wang *et al.*, *ACS Photonics* 8, 2947 (2021).

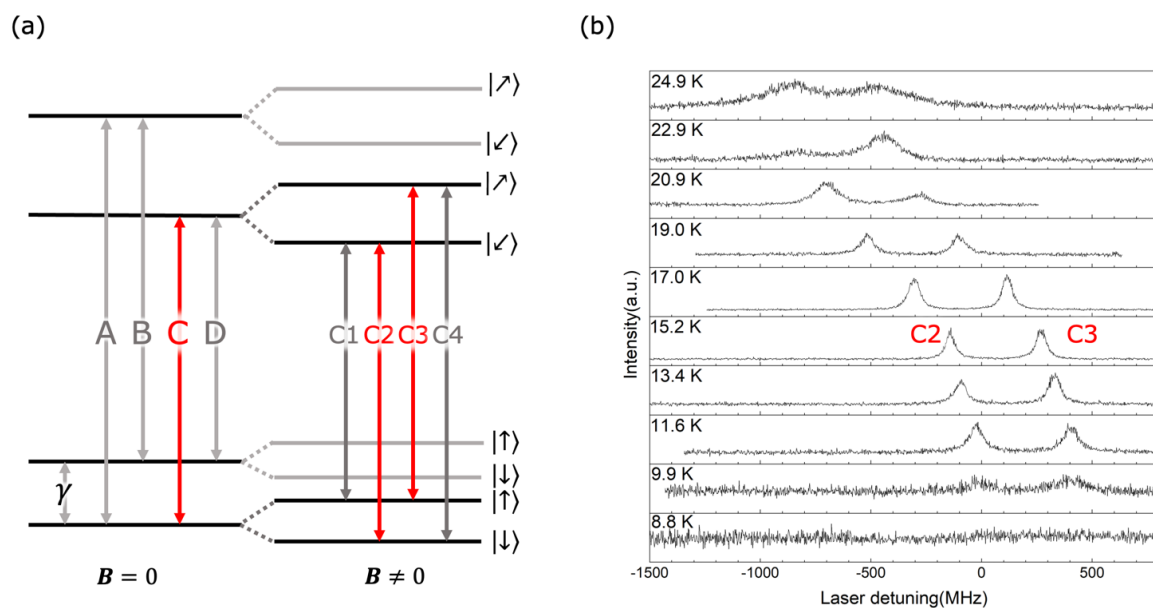


Fig. 1 (a) Electronic structure of PbV center. Zeeman splits under a magnetic field (right panel).

(b) PLE spectra at various temperatures.

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.10] Code-sharing Session of 6.5 & 7.5

[22a-A501-1~3] CS.10 Code-sharing Session of 6.5 & 7.5

Masahito Tagawa(Kobe Univ.)

Fri. Sep 22, 2023 10:30 AM - 11:15 AM A501 (KJ Hall)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

[22a-A501-1] Reaction of ethylene on $\text{Cu}_3\text{Pd}(111)$ surface using supersonic ethylene molecular beam

○Masaaki Ando¹, Natsumi Murase¹, Yasutaka Tsuda², Takashi Yamada¹, Akitaka Yoshigoe², Michio Okada³ (1.Osaka Univ., 2.JAEA, 3.IRS, Osaka Univ.)

10:30 AM - 10:45 AM

[22a-A501-2] Oxidation mechanisms proceeding at local/entire area of hafnium absorbed Si(111)

○Takuhiro Kakiuchi¹, Yasutaka Tsuda², Akitaka Yoshigo² (1.Grad. Sch. Sci. Eng., Ehime Univ., 2.Japan Atomic Energy Agency)

10:45 AM - 11:00 AM

[22a-A501-3] PEEM Observation of Work Function Changes on LaB_6 Coated by 2D Materials

○Shuichi Ogawa¹, Ryunosuke Yusa², Gaoxue Wang³, Michael T. Pettes³, Fangze Liu⁴, Yasutaka Tsuda⁵, Akitaka Yoshigoe⁵, Tadashi Abukawa², Nathan A. Moody³, Hisato Yamaguchi³ (1.Nihon Univ., 2.Tohoku Univ., 3.LANL, 4.Beijing Inst. Tech., 5.JAEA)

11:00 AM - 11:15 AM

超音速分子線を用いた Cu₃Pd(111) 表面上でのエチレン分子反応

Reaction of ethylene on Cu₃Pd(111) surface using supersonic ethylene molecular beam

大阪大院理¹, 原子力機構², 大阪大放射線機構³

○安藤 雅晃¹, 村瀬 菜摘¹, 津田 泰孝³, 山田 剛司¹, 吉越 章隆², 岡田 美智雄³

Osaka Univ.¹, JAEA², Osaka Univ. IRS³

○Masaaki Ando¹, Natsumi Murase¹, Yasutaka Tsuda²,

Takashi Yamada¹, Akitaka Yoshigoe², Michio Okada³

E-mail: andom22@chem.sci.osaka-u.ac.jp

金属材料の酸化に伴う腐食によって、本来持っている性質が失われることがある。そこで、金属表面上にグラフェンを生成して酸化を抑制する研究が行われてきた[1][2]。グラフェン成長には、通常炭化水素の暴露条件下で反応系全体を加熱しながら生成する方法がとられている。しかしこの方法では分子の並進エネルギーと表面温度のいずれの効果が反応に影響している明らかにされていない。そこで本研究では、低温でグラフェン生成ができる可能性のある銅とパラジウムを組み合わせた Cu₃Pd(111)表面上でのグラフェン生成過程を明らかにする。本研究では、合金の基板を常温として分子のみを活性化できる超音速分子線を用いて、表面状態を放射光 X 線光電子分光法(SR-XPS)で追跡し、並進エネルギーと表面温度の効果を分けて議論することを目指した。

実験は SPring-8 BL23SU に設置された日本原子力研究開発機構の表面化学ステーションを用いて行った。Cu₃Pd(111)試料表面は、Ar⁺スパッタリングと加熱のサイクルを繰り返すことにより、清浄化した。その後、表面に超音速エチレン分子線を照射し、表面状態を放射光 X 線光電子分光法(SR-XPS)で追跡した。(図 1)に並進エネルギー0.42 eVのエチレン分子線を一定流束で照射した場合の C1s スペクトルを示す。青色で示した結合エネルギー288 eV 付近にピークがみられ、照射量が増えるにつれて成長することがわかった。発表ではエチレン分子の吸着状態や反応性について詳細を議論する予定である。

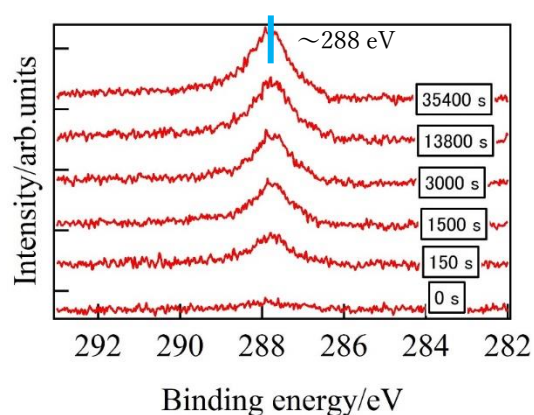


図 1. C1s スペクトルの照射量依存性

[1] Shanshan Chen, *et al.*, ACS Nano 2011, 5 (2) 1321.

[2] Shuichi Ogawa, *et al.*, J. Phys. Chem. Lett. 2020, 11, 9159.

ハフニウムが吸着した Si (111) 基板の局所/全域で進行する酸化反応機構 ～Hf の蒸着量に依存した表面界面酸化状態の違い～

Oxidation mechanism proceeding at local/entire area of hafnium absorbed Si(111)

愛媛大・院理工¹, 日本原子力研究開発機構² °垣内拓大¹, 津田泰孝², 吉越章隆²

Grad. Sch. Sci. Eng., Ehime Univ.¹, Japan Atomic Energy Agency²

°Takuhiko Kakiuchi¹, Yasutaka Tsuda², Akitaka Yoshigoe²

E-mail: kakiuchi.takuhiko.mc@ehime-u.ac.jp

二酸化ハフニウム (HfO_2) は、シリコン (Si) 半導体デバイスの高誘電率ゲート絶縁膜材料として高い注目を集めている。 HfO_2/Si の構造制御には、ハフニウム (Hf) と Si が作る種々の化合物の理解から出発して、酸素分子 (O_2) の並進運動エネルギー (E_t) や表面温度等に依存した生成物の違いから反応素過程を解明することが必要不可欠である。本研究では、異なる量の Hf が吸着した Si(111) [Hf-Si(111)]上に特定の E_t を持った O_2 を照射しながら放射光光電子分光法を行うことで表面界面の化学状態変化を観測し、Hf-Si(111)の酸化反応機構を考察した。

実験は、大型放射光施設 SPring-8 の BL23SU 表面反応分析ステーションにて行った。超高真空中 (5×10^{-8} Pa) で清浄な Si(111)-7×7 表面を作製した後、約 0.5、2.0 原子層 (ML) の Hf を堆積させた。試料は、超高純度の O_2 分子曝露 ($E_t \approx 0.03$ eV)、および超音速分子線発生装置を用いて $E_t \approx 0.39, 2.2$ eV まで加速した O_2 ビーム照射によって酸化した。試料の化学状態変化は、Hf 4f, Si 2p, O 1s 内殻光電子スペクトル (CLS) 測定より追跡した。

図は、(a) 0.5 および(b) 2.0 ML Hf-Si(111)の酸化が飽和した後に得られた Hf 4f_{5/2, 7/2}CLS と Voigt 関数でフィットした結果である。酸化に由来するピークは、(a) 0.5 ML の方が (b) 2.0 ML のそれより低束縛エネルギー (BE) 側に現れた。これは主に Hf^{3+} 状態のシリケートまでしか進行しないためである。この理由は、(a) 0.5 ML の低被服率では Hf が Si(111)-7×7 の rest-atom や adatom 上に吸着して特異な局所構造 (hexagonal structure) を形成し、その周辺でのみ酸化が進行したことによる。一方、2.0 ML では、 Hf^{4+} 状態のシリケートまで生成しており、酸化反応が表面の金属 Hf 層全域で速やかに進行したためと考えられる。

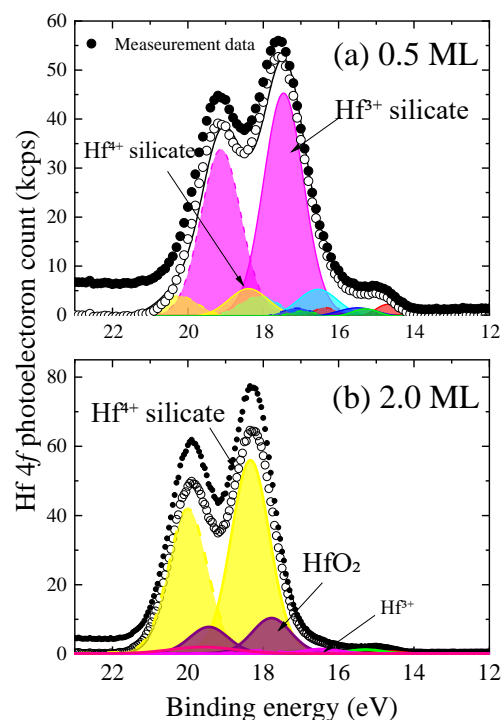


Fig. Hf 4f_{5/2, 7/2} photoelectron spectra obtained from Hf-Si(111) with the Hf thicknesses of (a) 0.5 and 2.0 MLs. These spectra were fitted by using Voigt function after subtracting the background.

2次元材料被覆による LaB₆ 仕事関数変化の PEEM 観察

PEEM Observation of Work Function Changes on LaB₆ Coated by 2D Materials

日大生産工¹, 東北大², ロスアラモス国立研³, 北京理工大⁴, 原子力機構⁵

○小川 修一¹, 遊佐 龍之介², G. Wang³, M. T. Pettes³, F. Liu⁴, 津田 泰孝⁵, 吉越 章隆⁵,
虻川 匡司², N. A. Moody³, H. Yamaguchi³

Nihon Univ.¹, Tohoku Univ.², LANL³, Beijing Inst. Technol.⁴, JAEA⁵, °S. Ogawa¹, R. Yusa², G. Wang³,
M. T. Pettes³, F. Liu⁴, Y. Tsuda⁵, A. Yoshigoe⁵, T. Abukawa², N. A. Moody³, H. Yamaguchi³

E-mail: ogawa.shuuichi@nihon-u.ac.jp

六ホウ化ランタン (LaB₆) は低い仕事関数を持ち熱電子カソードとして利用されているが、仕事関数の更なる低下と高い耐久性の達成によりフォトカソードとしての利用も期待される。本研究では LaB₆ の耐久性と電子放出量向上を目的として、2次元材料 (グラフェンおよび六方晶窒化ホウ素 (hBN)) 被膜による仕事関数変化を光電子顕微鏡 (PEEM) で調べた[1]。

LaB₆(100)表面に単層グラフェンと hBN を湿式転写法で転写被膜した。転写前の LaB₆ 表面は平均粗さ 1 nm 以下で平坦であることを AFM により確認した。また転写後の二次元材料は高品質の結晶を保っていることをラマン分光法で確かめた。PEEM 観察ではエネルギー 4.9 eV の水銀ランプを用いて仕事関数の空間分布を調べた。仕事関数の基準となるフェルミ準位は Au 薄膜を用いて決定し、SR-XPS で化学状態を調べた。さらに DFT 計算を行い、2次元材料被膜が LaB₆(100)の仕事関数に与える影響を理論的に検討した。

図 1(a)は 2次元材料で被覆された LaB₆(100)表面の模式図で、赤と緑の破線がそれぞれグラフェンと hBN を示す。図 1(b)は 905°C加熱後の PEEM 像であり、hBN コーティングされた領域で最も強い光電子放出が観測された。hBN 領域はグラフェン領域よりも明るく、hBN が仕事関数の低下に重要な役割を果たしていることが示された。

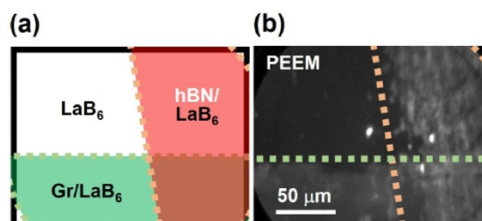


図 1 (a) 作製した 2次元材料被覆 LaB₆ の模式図。白、緑、赤の領域はそれぞれ、LaB₆、グラフェン被覆 LaB₆、hBN 被覆 LaB₆ を示す。(b) 905°C加熱後に、室温で撮影した PEEM 画像。

次に LaB₆(100)表面における二次元材料被覆による仕事関数変化について DFT 計算を実施した。計算結果から、hBN コーティングでは仕事関数が低下し、グラフェンコーティングでは増加することが示された。これは、界面の双極子効果によるものと考えられる。すなわち、半金属のグラフェンでは、LaB₆ から 2次元材料伝導帯への電荷移動により内向きの双極子が誘起され、仕事関数が増大する。一方 hBN ではバンドギャップが大きい[2]、交換反発に由来する外向き双極子が界面に形成され、仕事関数が減少することがわかった。

参考文献

- [1] H. Yamaguchi, R. Yusa, G. Wang, M. T. Pettes, F. Liu, Y. Tsuda, A. Yoshigoe, T. Abukawa, N. A. Moody, S. Ogawa, Appl. Phys. Lett. **122**, 141901 (2023).
[2] S. Ogawa, T. Yamada, R. Kadowaki, T. Taniguchi, T. Abukawa, Y. Takakuwa, J. Appl. Phys., **125**, 144303 (2019).

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.11] Code-sharing Session of 8.3 & 9.2

[20a-B202-1 ~ 10] CS.11 Code-sharing Session of 8.3 & 9.2

Takeshi Kitajima(National Defence Academy), Shinya Kano(AIST)

Wed. Sep 20, 2023 9:00 AM - 11:45 AM B202 (Civic Auditorium)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

- [20a-B202-1] Formation Mechanism of Binary Metallic Alloy Nanoparticles by Induction Thermal Plasma
 ○Manabu Tanaka¹, Kohei Yamashita¹, Motonori Hirose¹, Takayuki Watanabe¹
 (1.Kyushu Univ.)
 9:00 AM - 9:15 AM
- [20a-B202-2] Structural control of GeSn nanocolumnar thin films and their application to Li-ion batteries anode
 ○Ryo Hanai¹, Kodai Masumoto¹, Masayuki Ishihara¹, Tomoki Omae¹, Tomohisa Nakada¹, Ryoto Niwa¹, Reon Yokoi¹, Gichiro Uchida¹ (1.Meijo Univ.)
 9:15 AM - 9:30 AM
- △[20a-B202-3] Deposition of Si nanowires by RF magnetron sputtering and the effect of oxide film on Li ion battery performance.
 ○Koudai Masumoto¹, Ryo Hanai¹, Masayuki Ishihara¹, Tomoki Omae¹, Tomohisa Nakada¹, Ryoto Niwa¹, Reon Yokoi¹, Gichiro Uchida¹ (1.Meijo Univ.)
 9:30 AM - 9:45 AM
- △[20a-B202-4] Analyses of Au nanoparticles using arc plasma deposition (APD)
 ○Masahiro Takebayashi¹, Koyo Kawabata¹, Ryohei Ikeda¹, Tomohiro Shimizu¹, Shoso Shingubara¹, Takeshi Ito¹ (1.Kansai Univ.)
 9:45 AM - 10:00 AM
- [20a-B202-5] Formation of HfN nanoparticles on Si by remote plasma and plasmonic properties
 ○Takeshi Kitajima¹, Toshiki Nakano¹ (1.Nat. Def. Acad.)
 10:00 AM - 10:15 AM
- [20a-B202-6] [Young Scientist Presentation Award Speech] Transition metal oxide bronze/carbon composite particles as an environmental catalyst
 ○Kunihiko Kato¹, Yunzi Xin¹, Takashi Shirai¹ (1.ACRC, NIT)
 10:30 AM - 10:45 AM
- [20a-B202-7] Growth Mechanisms of Self-Assembling Si-QDs on Thermally-Grown SiO₂
 ○(M1)Jongeun Baek¹, Yuki Imai¹, Ryoya Tsuji¹, Katsunori Makihara¹, Seiichi Miyazaki¹
 (1.Nagoya Univ.)
 10:45 AM - 11:00 AM
- [20a-B202-8] Self-Assembling Formation of Si-QDs on SiO₂ Line-Patterns
 ○Ryoya Tsuji¹, Yuki Imai¹, Jongeun Baek¹, Katsunori Makihara¹, Seiichi Miyazaki¹
 (1.Nagoya Univ.)
 11:00 AM - 11:15 AM

[20a-B202-9] Formation of One-Dimensionally Self-Aligned Si-QDs and Their Local Electron Charging Characteristics

○(DC)Yuki Imai¹, Katsunori Makihara¹, Yuji Yamamoto², Wei-Chen Wen², Markus Andreas Schubert², Jongeun Baek¹, Ryoya Tsuji¹, Seiichi Miyazaki¹ (1.Nagoya Univ., 2.IHP)

11:15 AM - 11:30 AM

[20a-B202-10] Capacity of lithium-ion battery containing Si nanocrystals made from rice husks

○Kimihiisa Matsumoto¹, Kazuhide Kamiya¹, So Ito¹, Hazime Okui², Yashuhisa Takewa³ (1.Toyama Pref. Univ., 2.Dainen Material, 3.Takumi Giken)

11:30 AM - 11:45 AM

高周波熱プラズマを用いた二元合金ナノ粒子の生成機構 Formation Mechanism of Binary Metallic Alloy Nanoparticles by Induction Thermal Plasma

九大院工, °田中 学, 山下晃平, 廣瀬基規, 渡辺 隆行

Kyushu Univ., °Manabu Tanaka, Kohei Yamashita, Motonori Hirose, Takayuki Watanabe

E-mail: mtanaka@chem-eng.kyushu-u.ac.jp, watanabe@chem-eng.kyushu-u.ac.jp

高周波熱プラズマは高温かつ高化学活性であり、他の熱プラズマと比較してプラズマ体積が大きく滞留時間が長いという特長を有する。さらに、無電極放電であるため、電極由来の不純物の混入がない。また、プラズマ尾炎部での超急冷が可能であるため、従来では合成しにくい形態、結晶構造、化学組成のナノ粒子の合成が可能である。

Ni 系合金ナノ粒子は磁性体として、がん温熱治療や医療イメージング技術に利用されている。治療技術確立のためには、高純度な磁性体ナノ粒子の大量合成手法の確立が必須である。また、合金ナノ粒子の磁気特性の向上には、組成の制御と元素の分布の均一性が重要である。気相法による合金ナノ粒子の組成制御において、原料の金属成分の飽和蒸気圧および表面張力が重要であることが既往研究より明らかとなっている[1]。しかし、熱プラズマによる合金ナノ粒子の組成制御における理解は不十分である。本研究ではNi と他の金属成分の飽和蒸気圧比および表面張力比に着目し、合金ナノ粒子の組成制御に与える影響を調べた。

本実験では、Ni との蒸気圧および表面張力を比較することにより、Si, Ge および Mn を選定した。飽和蒸気圧は Ge, Si, Mn の順で Ni に近く、表面張力は Mn, Si, Ge の順で Ni に近い。原料中の金属含有量を 12.1mol% の割合とし、それぞれ実験、分析を行った。プラズマ発生条件としては、周波数を 4MHz、投入電力を 20 kW、雰囲気圧力を大気圧とした。インナーガスとして 5.0 L/min、シースガスとして 60.0 L/min、キャリアガスとして 3.0 L/min の Ar を流した。原料粉末として単体の Ni に加えて、Si, Ge あるいは Mn を用いた。平均粒径は 5~10 μm である。それら混合粉末を、0.3 g/min の供給速度でプラズマ中に投入し、瞬時に蒸発させることで均一な混合金属蒸気を得る。その後の急冷過程で生成した粒子を分析した。粉末 X 線回折 (XRD) により結晶構造を同定した。透過型電子顕微鏡 (TEM) により粒子形態と粒径分布を評価した。エネルギー分散分光法 (STEM-EDS) による半定量分析および元素マッピングを行った。

原料中の添加金属種を変更した際の生成物の XRD 分析の結果、いずれの系においても fcc 構造の Ni に由来する合金のピークが見られた。Ni 内に Mn, Ge が固溶すると合金の格子定数が大きくなるため、元素の固溶量に応じてピークが低角側にシフトする。また、Si が固溶すると格子定数は小さくなり、ピークは高角側にシフトする。Ni-Si 系ではピークシフトが確認されなかったのに対し、そのほかの系ではピークシフトが見られた。

Ni-Mn, Ni-Ge, Ni-Si 系における生成ナノ粒子の STEM-EDS による元素マッピング画像を Fig. 1 に示す。Ni-Ge 系では、Ni と Ge のマッピングが重なっており、原料組成比付近の濃度で均一に分布していた。マッピング画像から、合金粒子、コアシェル粒子および相分離型粒子の割合を評価した。今回検討した 3 つの系を比較すると、Ni-Ge 系ではほぼすべての粒子が合金化していた。それに対し、Ni-Mn 系は一つの粒子内で混合相境界面を有する相分離型粒子が多くみられた。また、Ni-Si 系ではほぼすべての粒子が粒子表面を添加金属種が覆うコアシェル粒子であった。

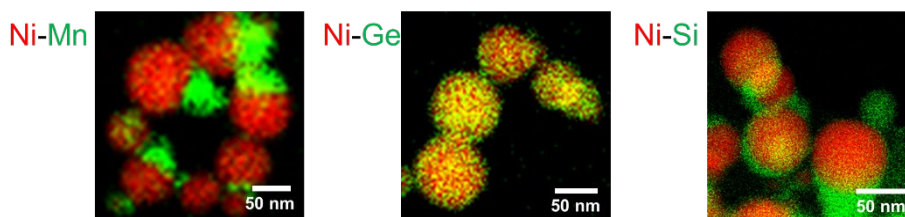


Fig. 1 Representative images of elemental mapping for prepared nanoparticles in different binary systems.

References:

- [1] M. Shigeta, et al., *Nanomaterials*, 6(3), 43 (2016).

GeSn ナノ柱状薄膜の構造制御と Li イオン電池負極への応用

Structural control of GeSn nanocolumnar thin films and their application to Li-ion batteries anode

○花井 稜¹, 益本 幸泰¹, 石原 雅之¹, 大前 知輝¹,
中田 智久¹, 丹羽 亮斗¹, 横井 玲音¹, 内田 儀一郎¹
(名城大・理工¹)

○R. Hanai¹, K. Masumoto¹, M. Ishihara¹, T. Omae¹, T. Nakada, R. Niwa, R. Yokoi, G. Uchida¹
(Fac. Sci. & Tech. Meijo Univ¹)

E-mail: 223427031@ccmailg.meijo-u.ac.jp

はじめに

現在、脱炭素社会の実現に向けて電気自動車の普及が進められており、長距離走行を可能とする Li イオン電池(LIBs)の高容量化が求められている。本研究では、従来の LIBs 負極活物質であるグラファイトの理論容量 372 mAh/g を超える新規負極材料として、高い理論容量 1,624 mAh/g を持つ Ge に着目した。Ge の課題である充電時の体積膨張を抑制し、耐久性に優れた高容量 Ge 負極を実現するには、Ge 材料のナノ構造化と導電率の改善が重要となる。本研究では 2 元共スパッタリングを用いて、高容量の Ge と導電率の高い Sn を合金化した薄膜を作成し、LIBs 負極へと応用した。

実験結果

Φ15 の銅基板上に、Ar ガスを用いた 2 元共スパッタリング法を使用して、GeSn 負極膜を作製した。2 つのカソードには、それぞれ Ge ターゲットと Sn ターゲットを設置した。成膜の実験パラメータとして、ガス流量を 50、100、200、300、400、500 sccm と広範囲で変化させた。Ge カソード側の RF 投入電力を 60W、Sn カソード側の RF 投入電力を 20 W と固定し、Ar ガス圧力は 40 Pa とした。Fig. 1(a)(b)に低ガス流量と高ガス流量で成膜した GeSn 薄膜の表面と断面の SEM 像をそれぞれ示す。Ar ガス流量を変化させると、GeSn 薄膜のナノ構造が大きく変化した。50、100 sccm と流量が低い条件では、ナノ粒子が凝集したナノ構造膜が形成された。一方、流量が高い 300、400 sccm では、直径 123 nm のロッドの先端が細くなりながら真上に伸びるナノ柱状構造の膜が形成された。Fig. 2 に成膜した GeSn 薄膜の X 線回折パターンを示す。低流量で成膜した平滑膜では Ge と Sn の結晶ピークは見られなかったが、高流量で成膜したナノ柱状膜では、Sn の結晶ピークが観測された。講演では、GeSn ナノ柱状薄膜を負極とした LIBs のサイクル特性について議論する予定である。

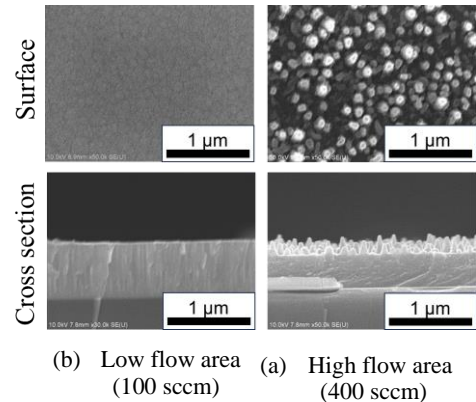


Fig. 1 GeSn thin film SEM images

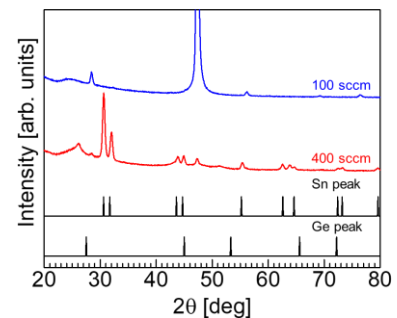


Fig. 2 GeSn thin film XRD pattern

**RF マグネトロンスパッタリング法を用いた
Si ナノワイヤーの堆積と酸化膜の Li イオン電池性能への効果
Deposition of Si nanowires by RF magnetron sputtering and
the effect of oxide film on Li ion battery performance.**

○益本 幸泰¹, 花井 稜¹, 石原 雅之¹, 大前 知輝¹,
中田 智久¹, 丹羽 亮斗¹, 横井 玲音¹, 内田 儀一郎¹
(名城大学・理工, 名城大¹)

○K.Masumoto¹, R.Hanai¹, M.Ishihara¹, T.Omae¹, T.Nakada¹, R.Niwa¹, R.Yokoi¹, G.Uchida^{1,2}
(Fac.Sci & Tech. Meijo Univ¹)

E-mail: 223427037@ccmailg.meijo-u.ac.jp

はじめに

現在、Li イオン電池はスマートデバイスを始め、電気自動車等の車載用バッテリーとして用いられており、更なる高容量化が求められている。従来のカーボン(C)負極の理論容量 372 mAh/g を超える、高容量 Li イオン電池の実現には新規負極材料の開発が必要不可欠である。本研究では、従来のカーボン負極の 10 倍以上の高い理論容量を持つ Si 材料(理論容量 : 4,200 mAh/g)に着目し、Si と Sn を混合した薄膜を RF マグネトロンスパッタリング法にて作製した。その後、大気圧下で焼成処理を行うことで高耐久化に有効である、強固な酸化膜を形成し、Li イオン電池負極へと応用展開した。

実験結果

1 インチサイズの SiSn(Si :Sn = 94 : 6 at%)ターゲットを用いた RF(13.56 MHz)マグネトロンスパッタリング法により、集電体となるステンレス基板上に SiSn 薄膜を堆積した。成膜条件は、プラズマ生成ガスとして He ガスを用いて、真空容器内のガス圧力を 300 mTorr、RF 電力を 80 W(15.8 W/cm²)、ターゲット-基板間距離を 20 mm とした。成膜後に大気圧下で焼成処理を行い、焼成温度をそれぞれ、300、500、750 °C とした。Fig. 1 に焼成温度 750 °C の際の表面 SEM 像を示す。750°C で焼成した薄膜は、直径 170 nm の 1 次元ナノワイヤーを形成し、その膜密度は 0.31 g/cm³ であり、非常にポーラスな膜構造であることがわかった。Fig. 2 に Si/Sn/O 組成比の焼成温度依存性を示す。焼成温度が上昇することで酸素の含有率が増え、ワイヤー表面の酸化膜が厚くなっていることが示唆される。

講演では、薄膜の結晶性、元素組成比と Li イオン電池特性との相関についても議論する予定である。

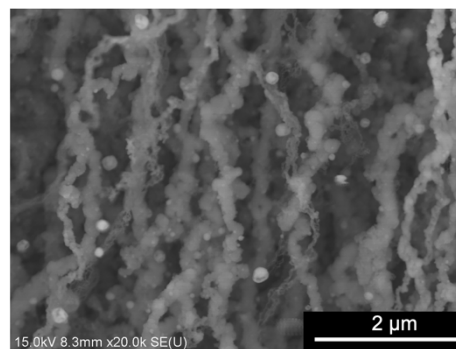


Fig. 1 SEM image of annealing at 750 °C

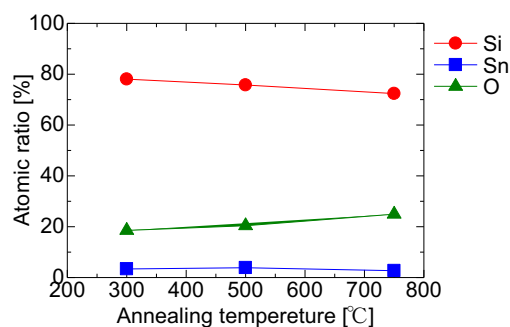


Fig. 2 Composition ratio of thin film

アークプラズマ蒸着法による金ナノ粒子の作製と粒子分析

Analyses of Au nanoparticles using arc plasma deposition (APD)

関西大院理工[○](M1)竹林聖弘, (M2)川端航遥, (B)池田瞭平, 清水智弘, 新宮原正三, 伊藤健

Grad. Sch. Sci. & Eng., Kansai Univ., [○]Masahiro Takebayashi, Koyo Kawabata, Ryohei Ikeda,

Tomohiro Shimizu, Shoso Shingubara, Takeshi Ito

E-mail: k798891@kansai-u.ac.jp

1.序論

ナノ粒子の作製方法には物理法（粉砕法）と金属原子を生成させて作製する化学法（凝集法）があり、化学法は、主に湿式法と乾式法に分類できる。物理法は粉体の粉砕によりナノ粒子を作製するが、粒子径の制御が難しい。湿式法では廃液処理が必要であり、環境へ負荷がかかる。そこで私たちは、乾式で環境負荷の少ないアークプラズマ蒸着法(APD)に注目した。APD は簡単にナノ粒子の作製が可能であることからこれまでに燃料電池の触媒として知られる白金ナノ粒子の作製に応用されており [1, 2]、私達のグループはFeナノ粒子の制御についても報告している[3]。本研究では金ナノ粒子に着目した。金ナノ粒子は、プラズモンと呼ばれる特異的な光学特性を発現する。この特性は、粒子表面の誘電率変化に敏感であることから、ナノ粒子表面に疾病マーカーに結合するリガンド分子を固定することでバイオセンサへの応用が期待されている。本研究では APD による金ナノ粒子作製条件の検討とその分析を行ったので報告する。

2.実験方法と結果

APD (APD-S, ULVAC) を用いて、カーボン支持膜上に金ナノ粒子を作製した。成膜量は放電電圧の2乗に比例し、静電容量に比例することが知られている[4]。さらに、ショットパルス数の制御を行うことで成膜量を調整できる。成膜条件は、放電電圧を70~100 V、静電容量を2200 μ F、ショットパルス数を5~80回、蒸着時の圧力は 1.3×10^{-3} Paとした。作製したサンプルを透過型電子顕微鏡 (JEM-2100F, JEOL) で観察し、ImageJを用いて平均粒子径、被覆率の算出を行った。

測定結果の一例として、Fig.1 (a), (b)に放電電圧:100 V、静電容量:2200 μ F、パルス数:20回における観察像と粒子分布図を示す。(a)の画像はSTEM像であり、この画像を用いてImageJでデータ処理を行った結果、被覆率は約21.0%、平均粒子直径は約2.7 nmであった。(c)に、各パラメータの平均粒子径のまとめを示す。発表当日には、光学特性についても報告する予定である。

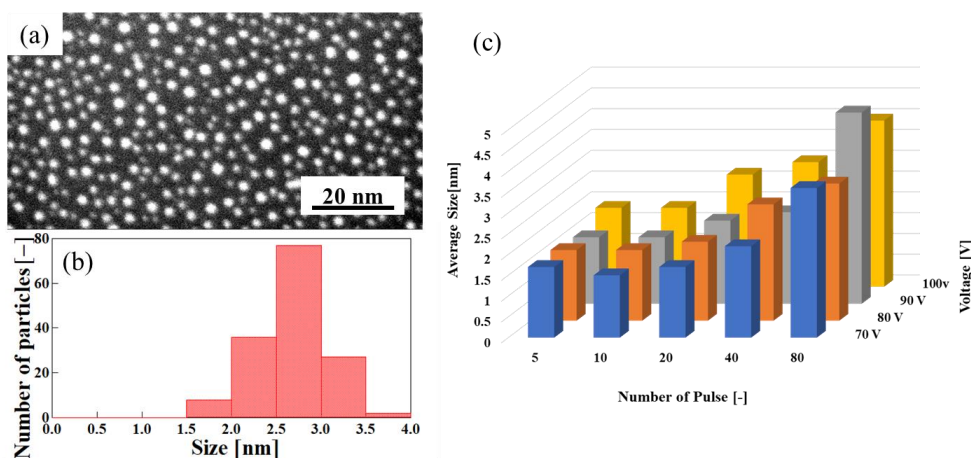


Fig. 1 (a), (b) STEM image and size distribution of Au nanoparticles deposited at a condenser capacity of 2200 μ F, discharge voltage of 100 V and pulse shots of 20. (c) Average particle size dependent with pulse shots and applied voltage.

謝辞 本研究は関西大学研究拠点形成事業(2022-2023)の助成を受けて実施した。

[参考文献]

[1] Y. Agawa, et al., *J. Electrochem Soc.* (2015), [2] K. Miyazawa, et al., *J Nanopart Res* (2017), [3]竹林他,第70回応用物理学会春季学術講演会予稿集, [4] S.H. Kima,et al., *Appl. Surface Sci.* (2017).

リモートプラズマによる Si 上 HfN ナノ粒子形成とプラズモン特性

Formation of HfN nanoparticles on Si by remote plasma and plasmonic properties

防衛大 ○北嶋 武, 中野 俊樹

National Defense Academy, Takeshi Kitajima and Toshiki Nakano

E-mail: kitajima@nda.ac.jp

1. はじめに

HfN ナノ粒子は可視領域でプラズモン共鳴する非貴金属であることから局所熱発生や光化学応用向け素材として注目されている¹。一方、HfN は MOSFET 用高誘電率薄膜として検討され²、我々は Hf ナノ粒子からの HfSiON 薄膜形成時に中間的に HfN ナノ粒子が生成できることを示した³。HfSiON 薄膜形成の過程で N₂ プラズマからの可視光照射が HfN ナノ粒子のプラズモン共鳴を誘起し得るため、HfN と SiO₂ 膜の界面反応への作用を検討する必要が生じた。今回、Si ウェハ上に HfN ナノ粒子をリモートプラズマにより形成し、光吸収スペクトルからプラズモン共鳴の有無を検討した。

2. 実験結果

超高真空チャンバー内で SiO₂/Si(100)試料に電子ビーム蒸着で形成した Hf ナノ粒子の AFM 像を図 1(a)に示す。6nm 程度の密集したナノ粒子の群れが確認できる。誘導結合リモートプラズマからの窒素ラジカル照射により 5 分間窒化処理した後の AFM 像を図 1(b)に示す。20~50nm 程度の径の HfN ナノ粒子の存在が認められる。図 1(c)に HfN 試料の光吸収スペクトルを示す。プラズモン共鳴に対応する 550nm でのピークは明確ではないが、280nm 近辺のインターバンド遷移の吸収ピークが確認できた。これらの吸収特性はリモートプラズマから照射される N₂ の 2nd-Positive バンドとオーバーラップがあるため、発熱やホット電子供給などによる界面反応促進の可能性を提示するものと考えられる。

1. O'Neill, D.B. et al. *Adv. Opt. Mater.* **9**, 2100510 (2021).
2. Wang, W., Nabatame, T. & Shimogaki, Y. *Surf. Sci.* **588**, 108–116 (2005).
3. Kitajima, T., Kage, R. & Nakano, T. *J. Vac. Sci. Technol. A* **36**, 051301 (2018).

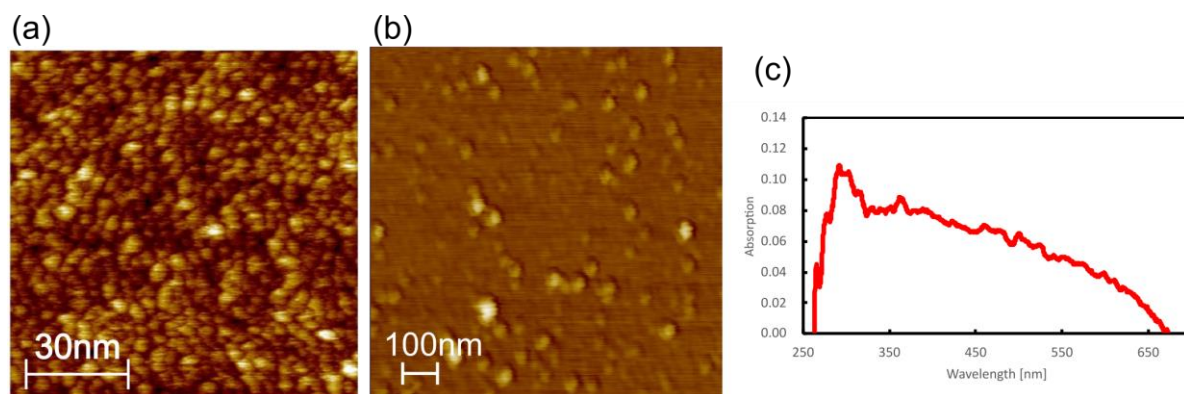


図 1. (a) Si ウェハ上の Hf ナノ粒子の AFM 像。(b) N₂ リモートプラズマ処理後の HfN ナノ粒子の AFM 像。(c) HfN ナノ粒子の UV-Vis での吸収スペクトル。

遷移金属系酸化物ブロンズ／カーボン複合粒子合成と 環境浄化触媒への応用

Transition metal oxide bronze/carbon composite particles
as an environmental catalyst

名大工 セラ研 °加藤 邦彦, 辛 韵子, 白井 孝

Nagoya Inst. Technol. ACRC, °Kunihiko Kato¹, Yunzi Xin¹, Takashi Shirai¹

E-mail: kato.kunihiko@nitech.ac.jp

WO₃ 及び MoO₃ は、イオンドープ（例えば H⁺）により局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) に基づく光吸収特性が発現するが、これを利用した光触媒／熱触媒反応、光熱変換応用が近年活発に研究されている^[1]。MO₃ (M=W, Mo) 原料からの水素ブロンズ(H_xMO₃)合成手法としては水素スピルオーバーやインターカレーション等が知られるが、我々はMO₃-汎用プラスチック表面・界面で引き起こされる新規メカノケミカル反応により、優れた光吸収能及び光触媒水質浄化能を示す H_xMO_{3-y}-MO₂/カーボン複合粒子のワンポット合成に成功した^[2]。本研究では、MO₃系における貴金属フリーメカノケミカルプロセスを用いた H_xMO_{3-y}/カーボン複合粒子合成及び光触媒応用について紹介する。

本開発手法では、MO₃ 及び汎用プラスチック (e.g., PP, PE, PS, PET) の混合粉体を原料とし、遊星ボールミルを用いた乾式処理 (Ar 雰囲気) により上述の複合粒子を得ることに成功している。Fig. 1 に合成スキームを示す。

MoO₃-PP 反応系を例にすると、遊星ボールミル中の衝突エネルギーが増大するとともに、プロトン源となるプラスチックの分解に伴う vdW gap への H⁺重ドープ及び酸素欠陥生成による H_xMo⁵⁺Mo⁶⁺O_{3-y} 形成が顕著となった。

また、更なるエネルギー付加により脱水反応が促進され Mo⁴⁺O₂ へと変化することが示唆されている。一方、ボールミル及び酸化物表面・界面での分解反応を経てカーボンが副生することがわかっている。複合粒子が有する H_xMoO_{3-y} 構造に基づく局在表面プラズモン共鳴及びカーボンとの複合化により、可視-近赤外領域でのブロードな光吸収が発現することが確認されている。

可視光及び近赤外照射下でのメチルオレンジ光触媒分解試験において、MoO₃ 原料は活性を全く示さないのに対し (分解反応速度, $k < 1.0 \times 10^{-5}$), H_xMoO_{3-y}-MoO₂ (カーボン) 構造を有する複合粒子の反応速度が 3 桁オーダーで増加することが明らかとなった (Fig. 2)。

さらに、優れた光触媒活性だけでなく、カーボン複合化による多機能性 (酸触媒性, 分子・イオン吸着性) を付加できることもわかっており、講演当日は環境浄化触媒応用について展望する。

参考文献 [1] H. Ge et al., *Chem. Commun.* **58** (2022) 8466. [2] K. Kato et al., *Ceram. Int.* **48** (2022) 4115.

謝辞；本研究は、東京応化科学技術振興財団 (22111) の助成により実施された。

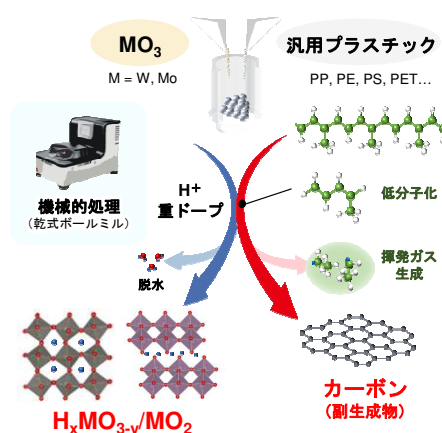


Fig. 1. Noble-metal-free synthesis of H_xMO_{3-y}-MO₂/carbon composite particles via mechanochemical reaction.

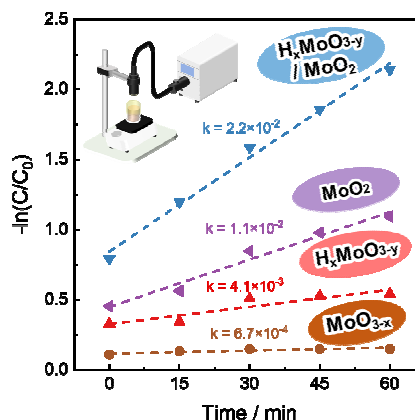


Fig. 2. Reaction rate in visible-light driven photocatalytic degradation of methyl orange.

熱酸化 SiO₂ 上へ自己組織化形成した Si 量子ドットの成長機構 Growth Mechanisms of Self-Assembling Si-QDs on Thermally-Grown SiO₂

名大院工 °白 鍾銀, 今井 友貴, 辻 綾哉, 牧原 克典, 宮崎 誠一

Nagoya Univ., °Jongun Baek, Yuki Imai, Ryoya Tsuji, Katsunori Makihara,
and Seiichi Miyazaki

E-mail: makihara@nuee.nagoya-u.ac.jp

序 SiH₄ ガスの減圧化学気相堆積(LPCVD)による極薄 SiO₂ 上への Si 量子ドットの自己組織化形成では、LPCVD 直前の希釈 HF 処理により SiO₂ 表面を OH 終端することで、Si 量子ドットが高密度・一括形成できる[1]。本研究では、as-grown SiO₂ 表面において、Si 量子ドット形成における基板温度がドット形状に及ぼす影響を AFM および SEM により評価した。

実験 p-Si(100)基板上に 1000°C ドライ熱酸化により膜厚~5.7nm の SiO₂ 膜を形成した後、pure-SiH₄ を用いた LPCVD により Si 量子ドットの自己組織化形成を行った。SiH₄-LPCVD 時におけるガス圧力、堆積時間は 25Pa、170sec で一定とし、基板温度を 550~610°C で変化させた。AFM 測定には、曲率半径~7nm の Si 探針を用いた。

結果および考察 基板温度 590°C で SiH₄-LPCVD した場合、AFM 像から面密度~10¹⁰cm⁻² の Si 量子ドットの形成が確認でき、AFM 像から求めたドットの高さ分布を log-normal 関数でフィッティングして算出した平均高さは~13.9nm であった(Figs. 1 (a and a')). また、AFM 像から直径を計測し、半径分布から同様に平均値を算出した結果、~21.2nm であった。この結果は、SiH₄ 熱分解温度よりも十分に高い温度で CVD 形成したにも関わらずドットの形状は楕円状になっていることを意味している。AFM 探針の曲率半径による空間分解能を鑑み、AFM と同じ測定領域を SEM により測定して、同様に半径分布を評価した結果、ドットの平均半径は AFM で求めた平均高さと同程度であり、590°C で形成した Si 量子ドットの真の形状は半球であることが分かった(Figs. 1 (b and b')). そこで、異なる基板温度で形成した Si 量子ドットにおいても同様の評価を行い、AFM から算出した平均高さ と SEM から求めた平均半径をアレニウスプロットした結果、基板温度 550~610°C の範囲では、ドット高さは基板温度に対して指数関数的に増大(活性化エネルギー: ~2.68eV)するものの、ドットの横方向の成長機構は~580°C 近傍を境に異なることが分かった(Fig. 2)。この結果は、基板温度~580°C 以上では、表面エネルギー低減のための凝集作用が律速要因となる結果、Si 量子ドットが半球状に形成されるが、580°C 以下ではプリカーサーの表面マイグレーションによる供給が支配要因となり半楕円体形状になることを示している。

結論 熱酸化 Si 基板上へ SiH₄-LPCVD における Si 量子ドットの自己組織化形成では、基板温度 580°C 以上では半球状の Si 量子ドットが形成されることが分かった。

文献 [1] S. Miyazaki *et al.*, Thin Solid Films 369, 55 (2000).

謝辞 本研究の一部は、科研費基盤研究(A) 21H04559 の支援を受けて行われた。

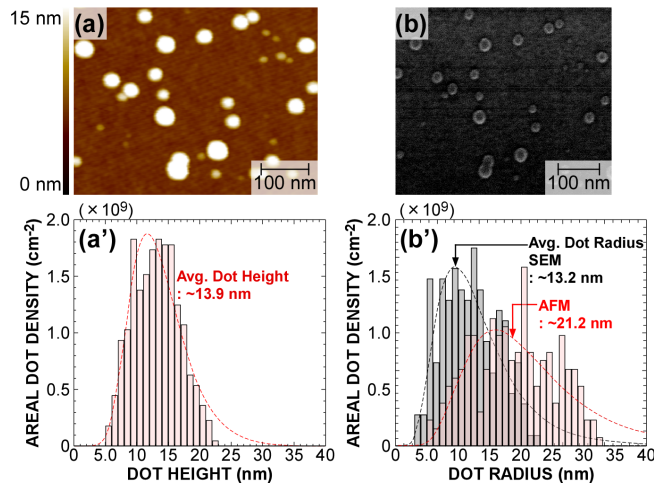


Fig. 1 (a) AFM and (b) SEM images of same area taken after SiH₄-LPCVD at 590°C. Size distributions of Si-QDs evaluated from the AFM and SEM images corresponding to (a) and (b), respectively.

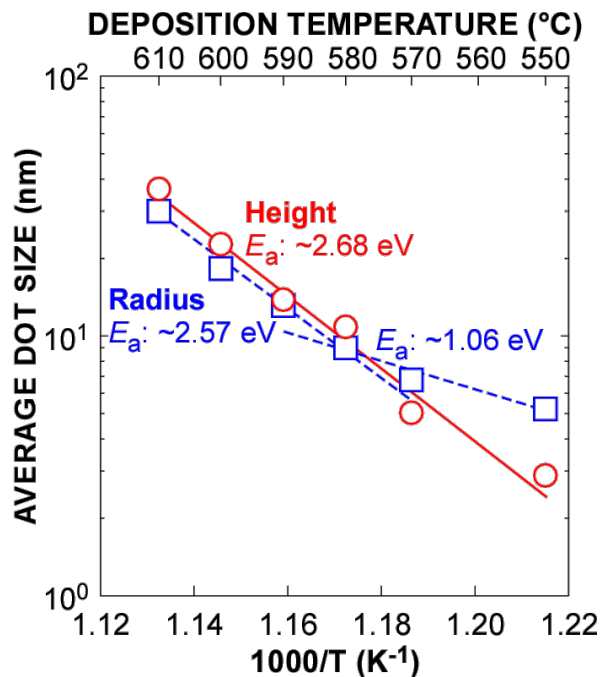


Fig. 2 Arrhenius plots for average height and radius of Si-QDs formed on as-grown SiO₂, which were evaluated from the size distributions.

極細 SiO₂ ラインパターン上への Si 量子ドットの自己組織化形成

Self-Assembling Formation of Si-QDs on SiO₂ Line-Patterns

名大院工 °辻 綾哉, 今井 友貴, 白 鍾銀, 牧原 克典, 宮崎 誠一

Nagoya Univ., °Ryoya Tsuji, Yuki Imai, Jongeun Baek, Katsunori Makihara,

and Seiichi Miyazaki

E-mail: makihara@nuee.nagoya-u.ac.jp

序>SiH₄のLPCVDにおいて、SiO₂表面のSi-OH結合がSi量子ドット核形成の反応活性サイトとなることから、LPCVD直前に希釈HF処理を施すことで、SiO₂上にSi量子ドットを高密度・一括形成(~10¹¹cm⁻²)可能であり、さらには、SiO₂表面のOH終端を面内制御することで、Si量子ドットが配列形成できること報告してきた[1]。本研究では、OH終端した極細SiO₂ライン上におけるSi量子ドットの成長過程を評価した。

実験>n-Si(100)基板上に1000°Cドライ熱酸化により膜厚~3.0nmのSiO₂膜を形成後、電子線リソグラフィーおよびドライエッチングにより、ライン幅~50nm(スペース幅~50nm)のSiO₂ラインパターンを形成した。その後、0.1%希釈HF処理を行うことで、SiO₂ライン表面をOH終端、Siスペース表面をH終端した後、800°C熱酸化を行った。800°C酸素雰囲気においては、表面Si-OH結合は安定維持される一方、H終端Si表面には膜厚~1.4nmのSiO₂膜が形成される。これにより同一Si基板上にライン状にOH終端したSiO₂パターンが形成される。その後、100%SiH₄を用いたLPCVD(580°C、100Pa、30~150sec)によるSi量子ドットの自己組織化形成を行った。

結果および考察>SEM像から、~50nmのSiO₂ラインの形成が確認できる(Fig. 1(a))。SiO₂ライン&スペースパターン上にSiH₄-LPCVDを行った場合、SiO₂ライン上にはのみSi量子ドットの形成が認められることから、酸素終端領域のドット密度は極めて抑制されていることが分かる(Fig. 1(b))。また、表面OH終端したSiO₂薄膜(パターン形成無し)上では、SiO₂ライン上よりも小さな半球状のSi量子ドットの高密度・一括形成(~10¹¹cm⁻²)が認められた(Fig. 1(c))。尚、SiO₂薄膜上に高密度形成したSi量子ドットが電氣的に分離していることは表面電位計測により確認している。SiO₂ライン上に形成したSi量子ドットのSEM像から、SiO₂ライン幅およびライン方向におけるSi量子ドットの直径を算出した結果、SiO₂薄膜上とは異なりライン幅方向の成長が顕著であった(Figs. 2(a, b))。

SiH₄-LPCVD時間を変化させ、同様にドットの直径を評価した結果、SiO₂ライン上においても、堆積初期段階ではSiO₂薄膜と同様に半球状のドットが形成されるものの、LPCVD時間の増加に伴いライン幅方向の成長が顕在化することが分かった。尚、150秒のLPCVDでは、ライン方向の直径がSiO₂薄膜上のドットと同程度であることから、SiO₂ライン上のSi量子ドットにおいても電氣的に分離していることが示唆される。これらの結果は、反応前駆体の表面拡散長が~48nmであることを考慮すると[1]、OH終端したライン上外からの反応前駆体の供給(表面マイグレーション)に起因するローディング効果によりライン幅方向における成長レートが増加したと解釈できる。

結論>SiH₄-LPCVDによる~50nm幅ライン&スペース熱酸化Si基板上へのSi量子ドットの形成では、LPCVD時間の増加に伴いライン幅方向の成長が顕在化することが分かった。

文献>[1] Y. Imai *et al.*, Mater. Sci. Semicond. Process. **162**, 107526 (2023).

謝辞>本研究の一部は、科研費基盤研究(A)21H04559および日比科学技術振興財団の支援を受けて行われた。

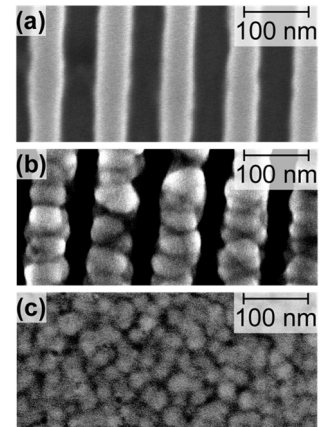


Fig. 1 Top views of SEM images taken (a) before, and after SiH₄-LPCVD for 150 sec on (b) line-patterned SiO₂ and (c) flat SiO₂ without patterning.

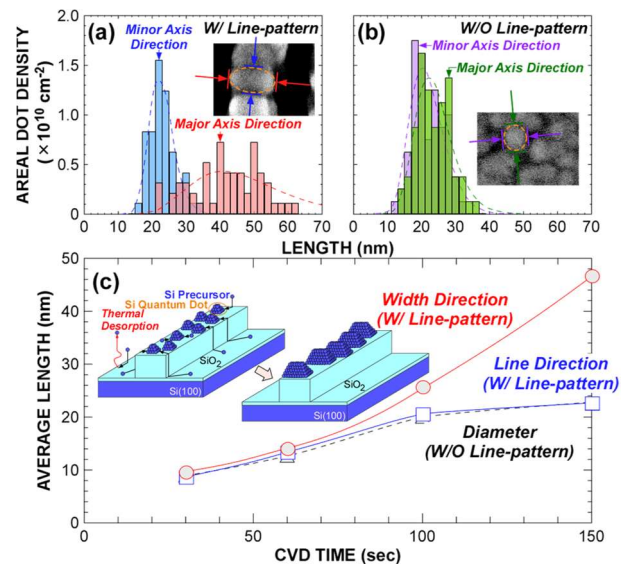


Fig. 2 Size distributions of Si-QDs formed on a SiO₂ line pattern in the longitudinal and line-width directions of the pattern (a), and diameter distribution of Si-QDs on SiO₂ without patterning (b). Average sizes determined from the size distribution of (a) and (b) as functions of LPCVD time (c). Schematic illustrations of self-assembling formation of Si-QDs on patterned SiO₂ are also shown in the inset.

一次元縦積み連結 Si 量子ドットの形成と局所帯電特性評価

Formation of One-Dimensionally Self-Aligned Si-QDs and Their Local Electron Charging Characteristics

¹名大院工, ²IHP ^{○1}今井 友貴, ¹牧原 克典, ²山本裕司, ²Wen Wei-Chen, ²Schubert Andreas Markus, ¹白 鍾銀, ¹辻 綾哉, ¹宮崎 誠一

¹Nagoya Univ., ²IHP, ^{○1}Yuki Imai, ¹Katsunori Makihara, ²Yuji Yamamoto, ²Wei-Chen Wen, ¹Jongeun Baek, ¹Ryoya Tsuji, and ¹Seiichi Miyazaki
E-mail: makihara@nuee.nagoya-u.ac.jp

序 > これまでに、極薄 Si 熱酸化膜上に形成した Si 量子ドット上への Ge の選択成長、熱酸化・高温熱処理および Si の選択成長を精密制御することで、自己整合的に一次元縦積み連結した Si 系量子ドットを形成できることを明らかにしてきた[1]。本研究では、熱酸化膜上に形成した極薄 SiO₂/Poly-Si 構造上への SiH₄-LPCVD による Si 量子ドットの形成と熱酸化を制御することで、一次元連結 Si 量子ドットの高密度形成を試みた。

実験 > n 型 Si(100)基板を 900°C 熱酸化により SiO₂ 膜形成後、高 H₂ 希釈 Si₂H₆-Reduced Pressure CVD により膜厚~4.5nm の a-Si 層を形成した。その後、真空熱処理により結晶化した後、600°C 熱酸化で~1.8nm の SiO₂ 膜を形成した。引き続き、0.1%希釈 HF により SiO₂ 表面を OH 終端した後、SiH₄-LPCVD により Si 量子ドットを高密度・一括形成した。Si 量子ドット形成後、850°C で熱酸化(5~75 分)を行った。

結果および考察 > SiH₄-LPCVD 後の表面形状像から、SiO₂/poly-Si 上に Si 量子ドットが高密度・一括形成(平均ドット高さ: ~6.5nm, 面密度: ~10¹¹cm⁻²)出来ていることがわかる(Fig. 1 (a))。Si 量子ドット形成後に 850°C 熱酸化した結果、酸化時間の増加に伴い、ドット表面の酸化とともにドット間の poly-Si 層の酸化が進行し、50 分間の酸化ではドット間の poly-Si 層が完全に酸化されることで、一次元に縦積み連結した Si 量子ドットのセルフアライン構造が形成できていることが分かった

(Figs. 1 (b, c, and d))。ドット表面の SiO₂(~15nm)を 1.0%HF により除去した後、導電性 AFM 探針を用いて一次元連結 Si 量子ドットの局所帯電特性を評価した結果、電圧印加前の表面電位は一樣であるものの、+7.0V 印加した AFM 探針で表面掃引した場合、表面掃引した領域に対応した明瞭な正帯電(~29mV)が認められた(Figs. 2(a, b))。この結果は連結ドットから AFM 探針への価電子放出に起因した正帯電(正孔保持)で解釈できる。また、表面電位の経時変化を調べた結果、この正帯電は 120 分程度まで安定保持されることから、連結ドット構造が電気的に分離していることが確認できた。一方、熱酸化前の Si 量子ドット/SiO₂/poly-Si 構造では、+7.0V 印加直後において同程度の正帯電が認められるものの、時間経過に伴い緩やかに減少し、~12mV 程度で安定する。これは、+7.0V 印加した際に多数価電子がドットから放出された後、poly-Si 層からの伝導電子注入により正孔が補償され、少数正孔保持の状態では安定化すると考えられる。これらの結果から、一次元連結 Si 量子ドット構造からの多数価電子放出による正帯電の安定保持は、上下 Si 量子ドットの離散化エネルギー準位に起因すると解釈できる。

結論 > 極薄 SiO₂/poly-Si/SiO₂ 構造上に形成した Si 量子ドットの熱酸化により一次元縦積み連結 Si 量子ドット構造が形成でき、局所帯電状態評価から、多数正孔が安定保持できることが分かった。

文献 > [1] K. Makihara *et al.*, J. Appl. Phys. **112**, 104301 (2012).

謝辞 > 本研究の一部は、科研費基盤研究(A) 21H04559、国際共同研究加速基金 国際共同研究強化(A) 18KK0409、および日比科学技術振興財団の支援を受けて行われた。また、IHP クリーンルームスタッフおよびエピタキシーチームの多大なる支援に謝意を表す。

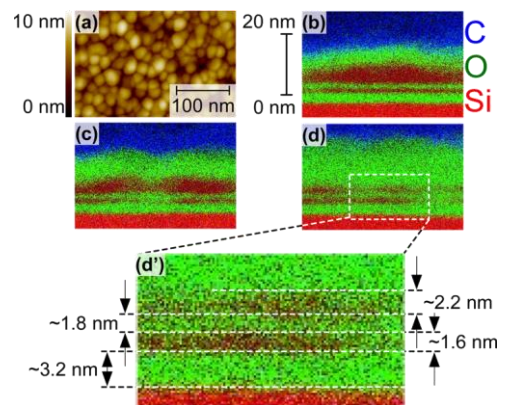


Fig. 1 (a) AFM topographic image taken just after SiH₄-LPCVD. Cross-sectional EDX mapping images of Si-QDs after thermal oxidation for (b) 5, (c) 20, and (d) 50 min. Image (d') is an enlarged view corresponding to (d).

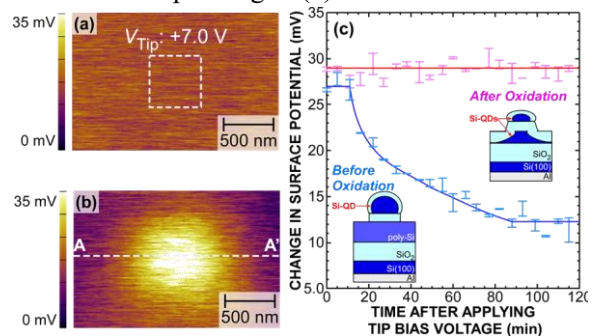


Fig. 2 Typical surface potential images taken (a) before and (b) just after applying tip bias of +7.0 V. (c) Temporal changes in the surface potential of the Si-QDs/SOI before and after oxidation. Schematic illustrations of the sample structures are also shown in the inset.

もみ殻由来 Si ナノ結晶含有リチウムイオンバッテリーの電池容量

Capacity of lithium-ion battery containing Si nanocrystals made from rice husks

富山県大¹, ダイネンマテリアル², タクミ技研³

○松本公久¹, 神谷和秀¹, 伊東聡¹, 奥井一², 武輪泰久³

Toyama Pref. Univ.¹, Dainen Material², Takumi Giken¹

○Kimihisa Matsumoto¹, Kazuhide Kamiya¹, So Ito¹, Hazime Okui², Yashuhisa Takewa³

E-mail: matsu@pu-toyama.ac.jp

稲のもみ殻は年間 1 億 2 千万 t 排出されるため、もみ殻のリサイクルに関する研究や取り組みが、多数報告されている。この中でも、もみ殻の高付加価値リサイクルとして、もみ殻から抽出した SiO₂を還元し蛍光する Si ナノ結晶の作製が報告されている[1]。近年 Si ナノ結晶は、リチウムイオンバッテリー (LIB) の負極材料への応用が注目されている。これは Si の理論容量が 4200 mAh/g であり、現在の LIB で使用されているカーボンブラック(CB)と比較して 10 倍以上高いためである。本研究では、現在 LIB 負極に利用されている CB に約 8 %のもみ殻由来 Si ナノ結晶を加え、電池容量の向上を示すことが出来るか検証した。

もみ殻から抽出した SiO₂を Mg 還元法によって還元し Si パウダー、Si ナノ結晶の作製を行った。もみ殻由来 Si ナノ結晶が 8 %になるように CB と混合し、スラリーを作製し、SEM 観測を行った。その後、スラリーが負極となる様に LIB コインセルを作製し、初回充放電特性とサイクル特性の評価を行った。

Fig. 1 に CB ともみ殻由来 Si ナノ結晶を約 8 %含むスラリーの SEM 画像を示す。CB スラリーでは約 10-20 μm のカーボン微粒子が均一に充填されていた(Fig. 1(a))。一方もみ殻由来 Si ナノ結晶含有スラリーでは、同様に 10-20 μm のカーボン微粒子が観測されたが、これら以外にも数 μm 以下の比較的小さな微粒子が多数観測された(Fig. 1(b))。この数 μm の微粒子がもみ殻由来 Si ナノ結晶であると考えられる。本講演では、LIB コインセルの容量測定結果から、もみ殻由来 Si ナノ結晶の LIB 負極としての有効性についても議論をする。

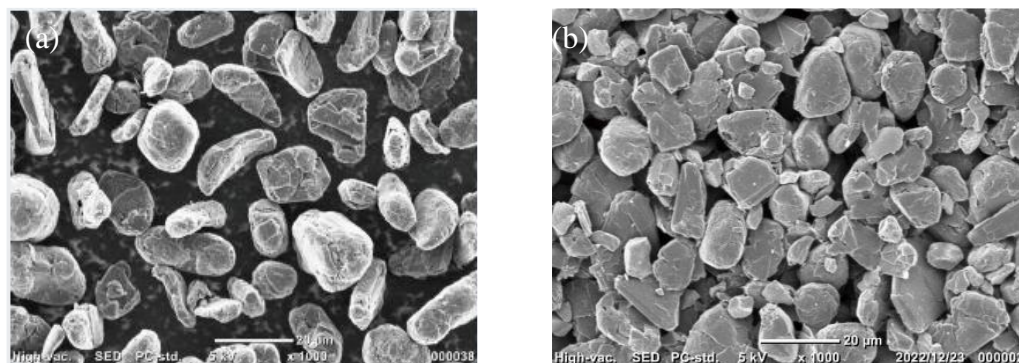


Fig. 1 SEM images of LIB anode slurry. (a) CB. (b) CB with 8 % of Si nanocrystals made from rice husks.

[1] K. Matsumoto, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 61, SB1009 (2022)

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.12] Code-sharing Session of 9.4 & M

[21a-B203-1~11] CS.12 Code-sharing Session of 9.4 & M

Haruhiko Usono(Ibaraki Univ.), Masahiro Nomura(Univ. of Tokyo)

Thu. Sep 21, 2023 9:00 AM - 12:00 PM B203 (Civic Auditorium)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

- [21a-B203-1] Reduction of thermal conductivity in Ge films including epitaxial Si-based nanodots/Si
 ○Yu Hirata¹, Ryosuke Hotta¹, Takafumi Ishibe^{1,2}, Yoshiaki Nakamura^{1,2} (1.Eng. Sci. Osaka Univ., 2.OTRI Osaka Univ.)
 9:00 AM - 9:15 AM
- [21a-B203-2] Power Density Analysis on Planar-type Thermoelectric Harvester
 ○Ryoto Yanagisawa¹, Masahiro Nomura¹ (1.IIS, Univ. of Tokyo)
 9:15 AM - 9:30 AM
- [21a-B203-3] Optimization of Wiring Layout of CMOS Integrated Thermoelectric Device
 ○Shuhei Arai¹, Takeo Matsuki^{1,2}, Takanobu Watanabe¹ (1.Waseda Univ., 2.AIST)
 9:30 AM - 9:45 AM
- ▲[21a-B203-4] Impact of Metal/Semiconductor Contact Numbers in an Integrated Silicon Micro Thermoelectric generator
 ○(D)Md MehdeeHasan Mahfuz¹, Shuhei Arai¹, Yuma Miyake¹, Cao Zhi¹, Takeo Matsuki², Watanabe Takanobu¹ (1.Waseda Univ., 2.AIST)
 9:45 AM - 10:00 AM
- [21a-B203-5] Characterization of thermal conduction in metal wires using SEM and IR-thermography 2
 ○Hiromu Hamasaki¹, Takumi Mochizuki¹, Hayate Suzuki¹, Hiroya Ikeda¹ (1.Shizuoka Univ.)
 10:00 AM - 10:15 AM
- ▼[21a-B203-6] Thermoelectric Performance Enhancement of SrTiO₃ with Reduced Thermal Conductivity by Hydride Anion Substitution
 ○XINYI HE¹, Seiya Nomoto¹, Takayoshi Katase¹, Terumasa Tadano², Toshio Kamiya¹ (1.MDX ES, Tokyo Tech, 2.NIMS)
 10:30 AM - 10:45 AM
- [21a-B203-7] Thermoelectric properties of sulfur-deficient colusite Cu₂₆Ti₂Sb₄Ge₂S₃₂
 ○Koichiro Suekuni¹, Philipp Sauerschnig², Michihiro Ohta², Michitaka Ohtaki¹ (1.Kyushu Univ., 2.AIST GZR)
 10:45 AM - 11:00 AM
- [21a-B203-8] Electronic States and Thermoelectric Calculations of Impurity-Doped Mg₂Si Considering Finite Temperature Effects due to Phonon Scattering
 ○Naomi Hirayama¹ (1.Shimane Univ.)

11:00 AM - 11:15 AM

[21a-B203-9] **Controlling thermoelectric power factor of two-dimensional electron gas system in AlGaAs/GaAs**

○Yuto Uematsu¹, Takafumi Ishibe^{1,2}, Takaaki Mano³, Akihiro Ohtake³, Yoshiaki Nakamura^{1,2} (1.Osaka Univ., 2.OTRI Osaka Univ., 3.NIMS.)

11:15 AM - 11:30 AM

[21a-B203-10] **Composition ratio control of epitaxial Fe₃Si film/Si for acquiring giant transverse Seebeck coefficient**

○Reona Kitaura¹, Takafumi Ishibe^{1,2}, Masaki Mizuguchi³, Yoshiaki Nakamura^{1,2} (1.Eng. Sci.Osaka Univ., 2.OTRI Osaka Univ., 3.IMaSS, Nagoya Univ.)

11:30 AM - 11:45 AM

[21a-B203-11] **Thermoelectric characteristics of epitaxial GeTe thin film with controlled Ge vacancy amount/Si**

○Takafumi Ishibe^{1,2}, Nobuyasu Naruse³, Yutaka Mera³, Yuichiro Yamashita⁴, Yuji Ohishi⁵, Yoshiaki Nakamura^{1,2} (1.Grad. School of Eng. Sci., Osaka Univ., 2.OTRI, Osaka Univ., 3.Shiga Univ. Medical Science, 4.AIST, 5.Grad. School of Eng., Osaka Univ.)

11:45 AM - 12:00 PM

エピタキシャル Si 系ナノドット含有 Ge 薄膜/Si による熱伝導率の低減 Reduction of thermal conductivity in Ge films including epitaxial Si-based nanodots/Si

阪大院基礎工¹, 阪大 OTRI² °平田 悠海¹, 堀田 亮輔¹, 石部 貴史^{1,2}, 中村 芳明^{1,2}

Eng. Sci. Osaka Univ.¹, OTRI Osaka Univ.²

°Yu Hirata¹, Ryosuke Hotta¹, Takafumi Ishibe^{1,2}, Yoshiaki Nakamura^{1,2}

E-mail: u498134b@ecs.osaka-u.ac.jp

[背景・目的] 環境低負荷な Si や Ge は、その高い社会応用性に加えて高い熱電出力因子を有するため、有望な熱電材料として期待されている [1, 2]。しかし、熱伝導率が高いため熱電材料としての利用は難しいと考えられてきた。この課題解決に向けて、Si 薄膜母体にナノ構造を導入するアイデアにより、大幅な熱伝導率の低減が達成された [3, 4]。しかし、電子散乱による出力因子の低下のため、ZT は未だ実用化には不十分な値である。そこで我々は、Si よりも高い出力因子と低い熱伝導率を潜在的に有する Ge 薄膜に着目し、エピタキシャル Si 系ナノドット (ND) 含有 Ge 薄膜を提案する。本薄膜は、フォノン散乱体としての Si 系 ND、電気伝導層としての Ge 層が空間的に分離した構造を有する。このため、ND でのフォノン界面散乱による大幅な熱伝導率 κ の低減、結晶方位制御した Ge 伝導層由来の高い出力因子が期待できる。本研究では、上記ナノ構造の形成と熱伝導率低減の観測を目的とする。

[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。その上に極薄の Si 層を成膜した後 (1.88 nm、室温)、熱酸化 (400°C、酸素分圧 2×10^{-4} Pa、10 分) を施すことで、Si 層表面上に極薄 Si 酸化膜 (1 原子層厚) を形成した。その上に、Si を蒸着し (3.13 nm、500°C)、エピタキシャル Si 系 NDs を形成した。この ND 上に Ge を蒸着して (40 nm、400°C)、Ge 層をエピタキシャル成長した。上記の Si 層、極薄 Si 酸化膜、Si 系 NDs、Ge 層の形成過程を 1 サイクルとして 5 サイクル繰り返し、エピタキシャル Si 系 ND 含有 Ge 薄膜 (積層薄膜) を作製した。構造観察には、反射高速電子回折法 (RHEED)、走査型電子顕微鏡法 (SEM)、原子間力顕微鏡 (AFM) 等を用い、伝熱特性評価には 2ω 法を用いた。

[結果] 構造観察用に別途作製した Ge バッファ層状 Si 系 NDs 試料を AFM で観察したところ、 ~ 9 nm の極小 NDs が超高面密度 ($\sim 6.2 \times 10^{11}$ cm⁻²) に形成されていた。この面密度は従来の Stranski-Krastanov 成長した ND のその 10 倍程度大きな値であった。一方で、積層薄膜試料の断面 SEM 観察により、ND 層が Ge 層と分離して積層されていることもわかった。 κ を測定したところ、本積層薄膜は、バルク Ge に対して 1/20 倍、エピタキシャル Ge ND 含有 Si 薄膜に対して 2/3 倍程度の低い κ を示すことが明らかとなった。本講演では、薄膜構造と κ の関係について詳述する。

[謝辞] 本研究の一部は科研費 基盤研究 A (JP23H00258) 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., *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 25428 (2020)., [4] T. Taniguchi, et al., *Nanoscale* **13**, 4971 (2021).

平面型熱電ハーベスタの出力密度解析

Power Density Analysis on Planar-type Thermoelectric Harvester

東大生研¹ ○柳澤亮人¹, 野村政宏¹, IIS Univ. of Tokyo¹, °R. Yanagisawa¹, M. Nomura¹

E-mail: r-yanagi@iis.u-tokyo.ac.jp

背景・目的：スマート社会のトリリオンセンサーを駆動するため、熱電発電などによるエネルギーハーベスト技術が重要であり、シリコンなどのユニバーサルな熱電材料の研究が行われている。熱電ハーベスタの作製にはウエハプロセスによる一括大量生産が有効であり、平面型デバイスの研究が行われている[1]。平面型には従来のバルク垂直型と異なる設計指針があると考え、平面型デバイスにおける一般的な設計指針を得るために出力密度の解析を行った。ハーベスタ応用に向けて環境中の温度差を想定し、薄膜熱電材料の物性値が与えられた場合に最適なデバイス寸法を決定するため、薄膜の厚さなどに依存する出力密度の式について解析を行った。

手法・結果：平面型熱電ハーベスタとして上下キャビティにより薄膜面内に温度差を印加する構造を想定し、重要な要素のみをモデル化した (図 1a)。発電に寄与する面内温度差 ΔT は薄膜の熱抵抗 θ_{TE} と対流冷却の熱抵抗 θ_{conv} によって与えられ、 $\Delta T = \theta_{TE}/(\theta_{TE} + \theta_{conv})$ が環境中の温度差 1°C あたり得られる。薄膜の熱伝導率 κ 、電気伝導率 σ 、ゼーベック係数 S は膜厚に依らず、内部電気抵抗 R は薄膜の抵抗で決まる場合、環境中 1°C あたりの発電量 $P = (S\Delta T)^2/4RA$ は、

$$P = \frac{(S\theta_{TE}/(\theta_{TE} + \theta_{conv}))^2}{4(L/\sigma tw)Lw} = \frac{S^2\sigma t}{4L^2} \left(\frac{L/\kappa tw}{L/\kappa tw + 1/h_{conv}Lw} \right)^2 = \frac{S^2\sigma}{4} (t/L^2) \frac{1}{((\kappa/h_{conv})(t/L^2) + 1)^2}$$

となる。薄膜の厚さ t と長さ L に依存し、 $t/L^2 = h_{conv}/\kappa$ のとき最大値 $P_{max} = S^2\sigma h_{conv}/16\kappa$ となる。 t と L に対する発電量 P のマップを図 1b に示す。薄膜長さが数 $10\ \mu\text{m}$ の場合、最適な厚さは $100\ \text{nm}$ 程度となる。図 1c に P_{max} の κ と異なる h_{conv} に対する計算結果を示す。ハーベスタの冷却を改善することで $1\ \mu\text{Wcm}^{-2}\text{K}^{-2}$ 以上の出力密度を達成できる結果を得た。実際のデバイスにおいては、素子間配線などを考慮してさらに最適化される。

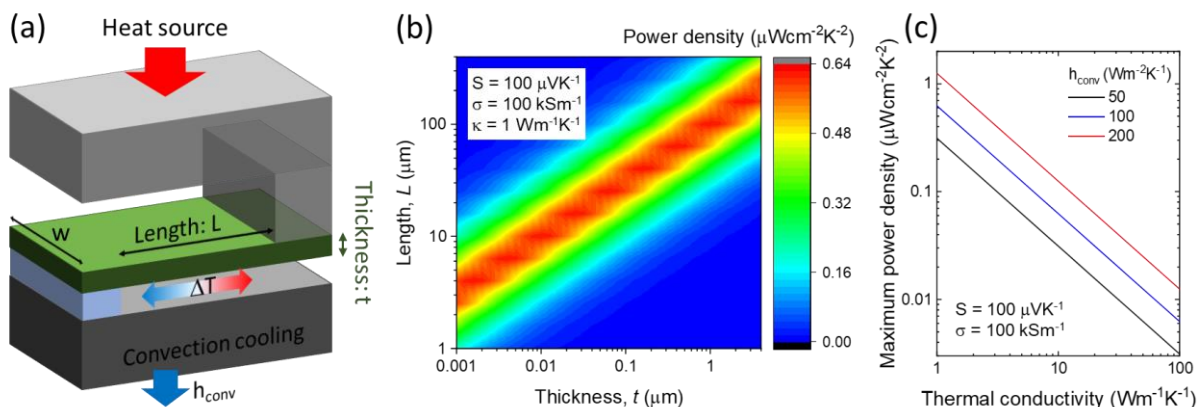


Figure 1 (a) Essential elements for a planar-type TE harvester. (b) Calculated power density for the thickness and length of TE film. (c) Calculated maximum power density as a function of κ with different h_{conv} .

謝辞：本研究は、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] Q. Zhang et al., Nat. Electron. **5**, 333 (2022).

CMOS 集積熱電デバイスの配線レイアウトの最適化

Optimization of Wiring Layout of CMOS Integrated Thermoelectric Device

早大理工¹, 産総研², ○新井崇平¹, 松木武雄^{1,2}, 渡邊孝信¹

Waseda Univ.¹, AIST², ○S. Arai¹, T. Matsuki^{1,2}, T. Watanabe¹

E-mail: ara-syu@asagi.waseda.jp

【はじめに】我々は環境中の未利用エネルギーを利用し発電するエナジーハーベスティング技術に着目し、集積熱電 (Thermoelectric : TE) デバイスの実証研究に取り組んでいる¹⁾。デバイス表面に与えられた熱流は Heat Guiding Metal (HG) を通じ、Si 基板上に横たわった Si ナノワイヤ (Si-NW) の一端に局所注入され、Si-NW 両端に生じる温度差により発電する (Fig. 1)。

Si-NW の高温側と低温側を電氣的に結ぶ第一配線による熱漏れが発電性能を低下させるため²⁾、これまで、電気抵抗を抑えつつ、Si-NW 両端の温度差を最大化する配線層の形状を明らかにする必要があった。そこで本研究では第一配線層、HG の配線レイアウトが異なる集積 TE デバイスを作製し、発電性能を調査した。

【実験方法】SOI 基板を用い幅 100 nm、長さ 1 μm 、本数 120 本の Si-NW と Si-Pad を作製し、P+ イオンの注入により n 型領域を形成した。第一層間絶縁膜成膜後、W プラグを埋め込み、第一配線層を作製した。配線形式は Fig. 2 に示す Type (i), (ii), (iii), (iv) の 4 種であり、接続段数は 288~396 段である。その後、第二層間絶縁膜及び、HG を成膜した。発電性能は、25°C に設定したステージ上にデバイスを固定、上部に 30°C のヒータを接触させ取得した。

【結果】Type (ii), (iv) と比較し Type (i), (iii) で高い開放電圧を得た (Fig. 3a)。Si-NW のゼーベック係数は試料間で差がないため、開放電圧は Si-NW 両端の温度差に比例すると考えてよい。Type(ii)の温度差が小さかった理由は、高温領域間の間隔が狭いためと考えられる。同様の理由から Type(iv)でも大きな温度差が得られる可能性もあったが、Type(iv)では高温側と低温側を結ぶ第一配線層の専有面積が大きく、ここを通じた熱漏れが大きかったため温度差が低下したと考えられる。Type(iii)は専有面積を抑えるため Si-Pad 及び W プラグを削減したが、かえって電気抵抗が増大し、発電密度 P_{density} の減少につながった (Fig. 3b)。4 種の TE デバイスの中で最大の発電密度を示した Type (i)は、温度差と電気抵抗を両立できるバランスの取れた配線レイアウトと言える。

【謝辞】本研究は JST-CREST (JPMJCR15Q7, JPMJCR19Q5) 及び科研費 (22H01530) の補助を受けて実施された。

【参考文献】 1) T. Watanabe et al., EDTM Proc. Tech. Papers, (2017) 86.

2) M. Mahfuz et al., JJAP, (2022) 61 SC1062.

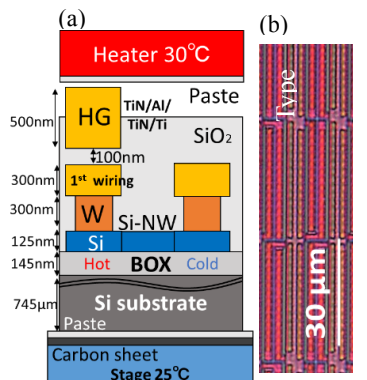


Fig. 1 (a) Cross sectional image and (b) optical view of TE device.

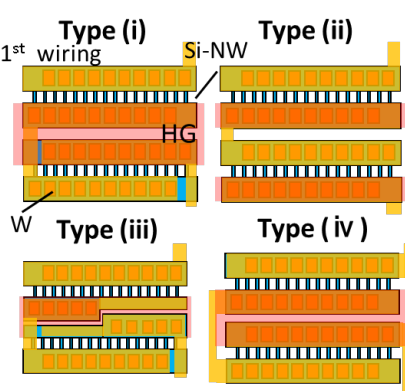


Fig. 2 Wiring layout of TE device.

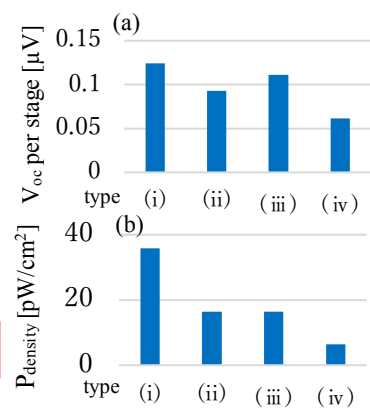


Fig. 3 (a) V_{oc} per stage and (b) P_{density} of each TE device.

Impact of Metal/Semiconductor Contact Numbers in an Integrated Silicon Micro Thermoelectric generator

Waseda Univ.¹, AIST², ⁰Md Mehdee Hasan Mahfuz¹, Shuhei Arai¹, Yuma Miyake¹, Cao Zhi¹, Takeo Matsuki^{1,2}, Takanobu Watanabe¹
E-mail : mahfuzhasan502@fuji.waseda.jp

1. Introduction

In an integrated micro-thermoelectric (TE) device, we found that any change in peripheral parts of thermoelements such as metal/semiconductor contacts affect to the TE power generation in the device. In this work, we fabricated integrated micro-thermoelectric generator (TEG) using Silicon Nanowire (Si-NW) thermoelements with different metal/Si contact numbers. The results show that a variation of temperature gradient happened through the Si-NWs due to the alternation of metal/Si contact numbers.

2. Experimental

The integrated micro-TEG has been fabricated on the SOI (SOI:120 nm, BOX:145 nm, Si sub.:745 nm) substrate. The SOI layer was turned into Si-NWs and pads which were heavily doped by P⁺ implantation and activation annealing. Both ends of a Si-NW bundle were connected to individual Si-pads. Then, a 2-layer Al-wiring system, fabricated with a plasma CVD-SiO₂ and TiN/AlCu/TiN/Ti, was formed on the Si-NWs and pads. The 1st Al-layer, 200nm-AlCu is for transferring the generated electrical power, the second layer, 400nm-AlCu, is for introducing “heat” called as “heat guide”. The 1st Al layer was connected to the “hot” and “cold” Si-pads with contact holes electrically. The 2nd-Al layer, heat guide, was formed over the “hot” pads, insulated electrically with 100nm-SiO₂ locally. The contact hole is arranged as 14-15 arrays on the hot and cold pads. The number of arrays varied in both pads which is expressed in this paper as H:C=X:X, where H and C are the hot and cold pads, respectively and X is the number of arrays. The schematic of the H:C=1:3 device is shown in Fig.1a, 1b. The cold stage was maintained at 20 °C by a Peltier cooler.

3. Results and Discussion

The open circuit voltage (V_{oc}) was measured for five sample devices with different numbers of hot and cold arrays (Fig. 2a). The hot-side electrode was heated through the heat guide layer by attaching a micro heater on the top of the device, whose temperature was maintained at 25°C. It has been seen from the experimental result the V_{oc} increases from the H:C=3:1 to H:C=2:1. Larger contact numbers on the hot side pad may cause more flow of heat resulting in smaller temperature differences (ΔT) through the Si-NWs which affects the smaller V_{oc} at H:C=3:1. However, V_{oc} increases as the number of contact arrays on the cold side pad increases while the number of contact arrays on the hot side pad remains constant.

To analyse the experimental result, we performed FEM analysis by using COMSOL Multiphysics. The

simulated V_{oc} qualitatively agrees with the experimental result (Fig. 2a). In the simulation it has been seen that the ΔT of Si-NWs increases with the increase of the number of contact arrays on the cold side pad resulting in the increase of V_{oc} .

The maximum power ($V_{oc}^2/4R$) obtained from the V_{oc} and resistances (R) is shown in the Fig. 2b. The resistance varies slightly with the change in the number of contact arrays. Therefore, the highest value of power generation mainly dependent on the V_{oc} increases 1.5 to 7 times higher when the number of contact arrays is H:C=1:3. Thus the designing of the number of contact holes is important to realize high power out in the cavity-free TEG.

4. Conclusion

In this study, an integrated micro-TEG with various contact arrays was demonstrated. The fabricated device shows a variation in the output power depending on the number of contact arrays. The result indicates that the structure of contact has a high impact on the power generation in the integrated TEG.

Acknowledgements

This work was partly supported by CREST, JST (JPMJCR19Q5), JST SPRING (JPMJSP2128), JSPS KAKENHI (22H01530, 20H05188 and 21H01366).

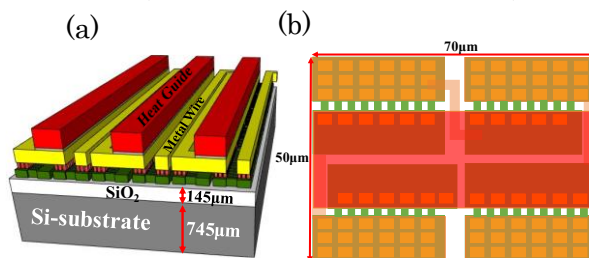


Fig.1. Schematic of the device H:C=1:3 (a) Cross-sectional view (b) top view of the device

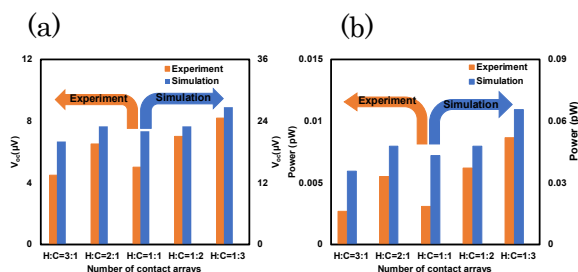


Fig.2. (a) Open circuit voltage (b) ΔT through the Si-NWs (c) maximum power dependence on the number of contact arrays

走査電子顕微鏡／熱画像カメラを用いた金属ワイヤの熱伝導特性評価 2

Characterization of thermal conduction in metal wires using SEM and IR-thermography 2

静岡大学 ◯濱崎 拓, 望月 拓海, 鈴木 颯, 池田 浩也

Shizuoka Univ., ◯Hiromu Hamasaki, Takumi Mochizuki, Hayate Suzuki, Hiroya Ikeda

E-mail: hamasaki.hiromu@shizuoka.ac.jp

【背景】

熱電変換効率向上の手段として, 材料のナノスケール化が有力視されているが, 微小化した材料の熱電変換性能の評価, 特に熱伝導率の計測には困難が伴う. 我々は, 走査電子顕微鏡(SEM)と熱画像カメラを組み合わせることにより, マイクロメートルスケールの材料に適用可能な熱伝導特性評価技術の構築を目指している. これまで, 直径 $50\ \mu\text{m}$ の金属線において熱拡散率を評価した結果について報告してきた[1]. 今回, 熱画像カメラの最小画素サイズである $25\ \mu\text{m}$ を下回る材料について熱拡散率の評価を行った.

【実験】

SEM の電子照射により加熱した金属線の温度分布の時間変化を熱画像カメラにより計測した. 加熱部の温度の時間変化を一次元の熱拡散方程式の数値解と比較することにより金属線の熱拡散率を評価した. 直径 $50, 30, 20\ \mu\text{m}$ のステンレス線 (SUS304) について実験を行い, ワイヤ径が減少した際の効果について検討した.

【実験結果】

図 1 に電子線加熱した直径 $20\ \mu\text{m}$ の SUS 線の熱画像カメラの像を示す. 熱画像カメラの最小画素である $25\ \mu\text{m}$ よりも直径が小さいため, 計測された温度の絶対値は実際の温度とは異なる. この効果を除去するため, 最高到達温度で規格化した温度の時間変化を用い, 数値解と比較した. 図 2 に規格化した温度の時間変化の実

験および計算結果を示す. -2 秒から電子線が照射され, 0 秒の時点で照射が止められた. 黒の四角は 3 回の実験の平均値を, 赤の丸はバルク SUS の熱拡散率である $3.5 \times 10^{-6}\ \text{m}^2/\text{s}$ を用いた数値計算の結果を示している. 実験値と計算値はよい一致を示しており, 最小画素サイズ以下の直径のワイヤに対しても本手法が適用可能であることがわかった.

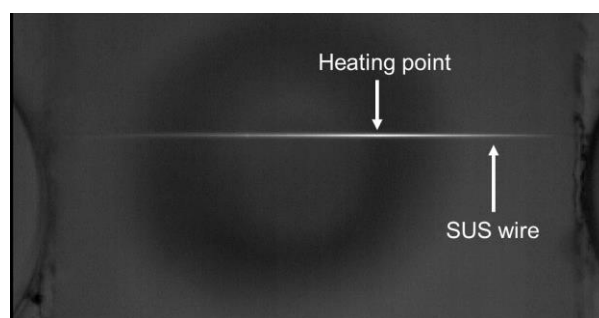


Fig. 1 Thermographic image of point-heated SUS wire.

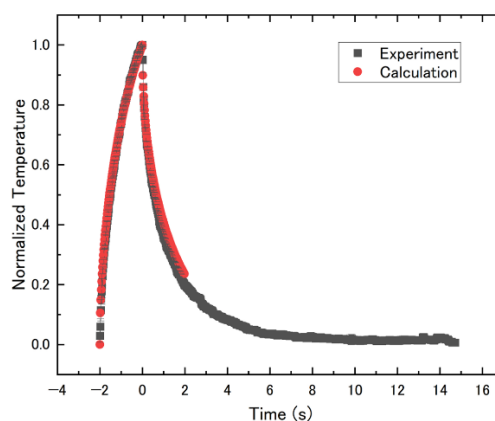


Fig. 2 Normalized temperature of point-heated SUS wire as a function of time

[1] 池田浩也 他, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会 (2023) 17p-PB02-7

Thermoelectric Performance Enhancement of SrTiO₃ with Reduced Thermal Conductivity by Hydride Anion Substitution

MDX ES, Tokyo Tech¹, NIMS²

°Xinyi He¹, Seiya Nomoto¹, Takayoshi Katase¹, Terumasa Tadano², Toshio Kamiya¹

E-mail: h-xinyi@mces.titech.ac.jp

Keywords: Thermoelectric material; Phonon scattering; Hydrogen

[Introduction] Developing high-efficiency and eco-friendly thermoelectric materials has been a significant challenge. SrTiO₃ has been expected as a candidate due to its abundance, non-toxicity, and chemical stability. Electron-doped SrTiO₃ exhibits high thermoelectric power factor, but the high lattice thermal conductivity (κ_{Lat}) hinders its energy conversion efficiency ($ZT = S^2 \cdot \sigma \cdot T \cdot \kappa^{-1}$, where S is the Seebeck coefficient, σ is the electronic conductivity, κ is the sum of electronic thermal conductivity (κ_{ele}) and κ_{Lat}). Traditional approaches to reduce κ_{Lat} involve the incorporation of heavy elements, leading to high costs and environmental concerns. In this study, we propose a new approach that utilizes hydride-anion (H⁻) substitution at oxygen ions (O²⁻) sites to suppress κ_{lat} and consequently enhance the ZT value of SrTiO₃.^[1] H⁻ and O²⁻ process contrasting atomic masses and electronegativity, as well as distinctive orbital symmetry. We expect that these distinctive characteristics lead to significant mass fluctuations and the formation of heterogeneous chemical bonding states, thereby effectively inducing strong phonon scattering in SrTiO_{3-x}H_x. To explore the impact of H⁻ substitution on phonon scattering in SrTiO₃, we performed investigations utilizing first-principles calculations aided by VASP and ALAMODE codes. Furthermore, we synthesized bulk polycrystals of SrTiO_{3-x}H_x and measured their thermoelectric properties.

[Computational details] First-principles calculations were performed employing the projector augmented wave (PAW) method implemented in the VASP code. Phonon transport calculations were conducted by solving the Peierls–Boltzmann transport equation within the relaxation time approximation, as implemented in the ALAMODE code. The phonon frequencies at $T = 300$ K were obtained by using the self-consistent phonon theory.

[Results and Discussion] We conducted anharmonic phonon calculations utilizing SrTiO_{2.75}H_{0.25} models, and discovered that H⁻ substitution significantly reduces κ_{Lat} from 9.18 W/(mK) of SrTiO₃ to the minimum value of 2.67 W/(mK) for SrTiO_{2.75}H_{0.25} (**Figure (a)**). In addition,

we found that H⁻ substitution reduces phonon lifetime (τ) and group velocity (v) ($\kappa_{\text{lat}} \propto \tau v^2$), i.e. it enhances phonon scattering and induces phonon softening, thereby restricting phonon transport in SrTiO₃. In pure SrTiO₃, κ_{Lat} is predominantly (> 60%) influenced by optical phonon modes associated with Ti and O. Interestingly, we observed that H⁻ substitution significantly reduces the contribution of optical phonons to κ_{Lat} , implying that the modification in Ti and O interaction through H⁻ substitution is significant to κ_{Lat} reduction in SrTiO₃ (**Figure (b)**). Contrary to expectations, the atomic mass difference between H

and O contributes slightly to the enhanced phonon scattering. On the other hand, the substitution of a fraction of O²⁻ with H⁻ leads to a mixture of strong Ti-O bonds and weak Ti-H bonds. These randomly distributed Ti-(O,H) bonds effectively enhance phonon scattering, consequently resulting in a substantial reduction in κ_{Lat} . Finally, we experimentally clarified that H⁻ substitution largely suppresses κ_{lat} to 3.6 W/(mK) of SrTiO_{3-x}H_x bulk polycrystals with $x = 0.216$. As a result, the SrTiO_{3-x}H_x polycrystals exhibit a maximum ZT value of 0.11 at room temperature, which continuously increased up to 0.22 at $T = 657$ K. This study presents a novel pathway for κ_{lat} reduction by the substitution of light element H for ZT enhancement in SrTiO₃ instead of heavy (toxic) elements, offering new possibilities for designing environmentally-friendly high ZT thermoelectric oxides.

References [1] X. He, et al. *Adv. Funct. Mater.* 2213144 (2023).

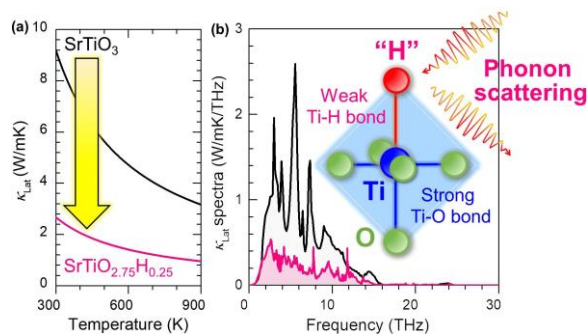


Figure: (a) Calculated lattice thermal conductivity (κ_{Lat}) with respect to temperature and (b) κ_{Lat} spectra of SrTiO_{2.75}H_{0.25} model compared with pure SrTiO₃ model.

硫黄欠損を導入したコルーサイト $\text{Cu}_{26}\text{Ti}_2\text{Sb}_4\text{Ge}_2\text{S}_{32}$ の熱電物性

Thermoelectric properties of sulfur-deficient colusite $\text{Cu}_{26}\text{Ti}_2\text{Sb}_4\text{Ge}_2\text{S}_{32}$

九大院総理工¹, 産総研 GZR², 末國 晃一郎¹, SAUERSCHNIG Philipp², 太田 道広², 大瀧 倫卓¹
Kyushu Univ.¹, AIST GZR², Koichiro Suekuni¹, Philipp Sauerschnig², Michihiro Ohta², Michitaka Ohtaki¹

E-mail: suekuni.koichiro.063@m.kyushu-u.ac.jp

銅-硫黄系多元化合物には、優れた熱電変換性能を示すものが多く存在する。その一例にコルーサイト $\text{Cu}_{26}\text{Ti}_2\text{M}_6\text{S}_{32}$ ($T = \text{V, Nb, Ta, Cr, Mo, W}$; $M = \text{Ge, Sn}$)があり、元素置換や結晶構造制御により、673 K での無次元性能指数 ZT が 1 に達する[1,2]。我々が最近見出した新規組成のコルーサイト $\text{Cu}_{26}\text{Ti}_2\text{Sb}_6\text{S}_{32}$ においても、Sb を Ge で置換してホールキャリア濃度を高めると、673 K での ZT は 0.9 に達した[3]。しかし、その後の調査から、 $\text{Cu}_{26}\text{Ti}_2\text{Sb}_{6-x}\text{Ge}_x\text{S}_{32}$ では合成時に生じる硫黄欠損が熱電物性に影響を与える可能性が示唆された。本研究では、硫黄欠損量を制御した試料を作製し、その結晶構造と熱電物性を調べることを目的とした。母物質には、Ge 置換によりホールキャリアが過剰にドーピングされた $\text{Cu}_{26}\text{Ti}_2\text{Sb}_4\text{Ge}_2\text{S}_{32}$ を用いた。これは、硫黄欠損導入に伴って、電子ドーピングによるホールキャリア濃度の最適化と格子熱伝導率の低減が同時に実現可能と期待したためである。

試料 ($\text{Cu}_{26}\text{Ti}_2\text{Sb}_4\text{Ge}_2\text{S}_x$) の合成は、(1) 原料単体の直接固相反応、(2) 試料の粉碎、(3) 熱処理、(4) 遊星ボールミルによる粉碎、(5) ホットプレス焼結の手順で行った。(1) の反応後の石英管内に硫黄単体が残留したためこれを回収し、(2) の粉碎時に生成物に混ぜた。得られた試料の粉末 X 線回折パターンから、 x の値を化学量論組成の 32 から 31.5、31 と減らしてもコルーサイト相は維持されることが分かった。さらに硫黄の量を減らした $x = 30.5$ では、コルーサイト相が主相であるものの、異相としてテトラヘドライト $\text{Cu}_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$ がわずかに析出した。興味深いことに、硫黄の仕込み量を減らすと共に格子定数は増大した。ここで、我々が先に報告した試料[3]の格子定数は、本研究における $x = 30.8$ に相当する値であった。

母物質 $x = 32$ の室温における電気抵抗率 ρ は $5.0 \mu\Omega\text{m}$ 、ゼーベック係数 S は $61 \mu\text{VK}^{-1}$ と共に低い。硫黄欠損量を増やすとそれらの値は増大し、 $x = 30.5$ では $\rho = 31 \mu\Omega\text{m}$ 、 $S = 152 \mu\text{VK}^{-1}$ となった。これはホールキャリア濃度が $3.5 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$ から $0.9 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$ まで低下したためであった。結果として、熱伝導率における電子の寄与は低下し、673 K での出力因子 $S^2\rho^{-1}$ の値は $x = 32-31$ で $1.4 \text{mWK}^{-2}\text{m}^{-1}$ と高い値を維持したことから、 $x = 31$ の 673 K での ZT は 1 まで高まった。なお、既報の試料[3]は、電気的特性と熱伝導率の値が本研究の $x = 30.5-31$ の結果に相当したことから、比較的多くの硫黄欠損が含まれていたと言える。格子熱伝導率を比較すると、硫黄を欠損させた試料および既報の試料[3]では、本研究の母物質 $x = 32$ と比べて 500 K 以下での格子熱伝導率が低下していたことから、硫黄欠損がフォノンの散乱中心として作用したと言える。当日は、デバイス化に向けた取り組みについても発表する。

[1] K. Suekuni *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **105**, 132107 (2014). [2] G. Guélou *et al.*, *J. Mater. Chem. C*, **9**, 773 (2021). [3] T. Hagiwara, K. Suekuni *et al.*, *Chem. Mater.*, **33**, 3449 (2021).

フォノン散乱による有限温度効果を考慮した Mg₂Si 系材料の電子状態および熱電特性の計算

Electronic States and Thermoelectric Calculations of Impurity-Doped Mg₂Si Considering Finite Temperature Effects due to Phonon Scattering

島根大 NEXTA, 平山 尚美

Shimane Univ. NEXTA, Naomi Hirayama

E-mail: n.hirayama@riko.shimane-u.ac.jp

持続可能な社会の実現にむけて、熱電変換技術を用いた廃熱の再資源化への関心が高まっており、環境低負荷かつ高出力な熱電材料の開発が求められている。しかし、熱電性能指数 $Z=\sigma S^2 T/\kappa$ (電気伝導率 σ , Seebeck 係数 S , 熱伝導率 κ) が示すように、優れた熱電材料を得るには複数の物性を最適化することが必要であり、その困難さが多くの熱電材料の実用化の壁となっている。そのため、理論計算による物性予測は、本分野の材料設計において重要な基盤技術である。

本研究では、無毒、軽量、安価な環境低負荷型熱電材料である Mg₂Si に着目し、Sb (n 型), Ag (p 型) を不純物として添加した系の電子状態と熱電特性を理論的に解析した。計算にはKKR-CPA法に基づく電子状態計算ソフト Akai KKR (Machikaneyama)を用いた。ここで、CPA法により不純物の不規則配置を扱い、さらに Debye 模型によりフォノン散乱の効果を取り入れることで有限温度効果を考慮した。その後、得られた電子状態を基に、線形応答理論を用いて電気伝導率と Seebeck 係数を計算した。尚、この手法では、Boltzmann 理論とは異なり緩和時間近似を課す必要がない。

電子状態計算から得られた Sb 0.5 at.% ドープ系と Ag 0.5 at.% ドープ系の状態密度を図 1 に示す。Sb 添加では、フェルミ準位 (エネルギー軸の原点) が伝導帯内に位置する n 型の状態が得られた。一方、Ag 添加ではフェルミ準位付近に状態が形成された。熱電計算からは、Sb 添加により σ が増加し、温度上昇に伴いさらに増加することが分かった。Ag 添加では、温度上昇に伴い、いったん σ が低下したのち、上昇に転じる挙動がみられたが、これは焼結体における実験結果を定性的に再現している。両者の Seebeck 係数も実験結果に近い値が得られた。以上から、本研究で用いた計算手法は、熱電材料の開発において有用なツールとなることが期待される。

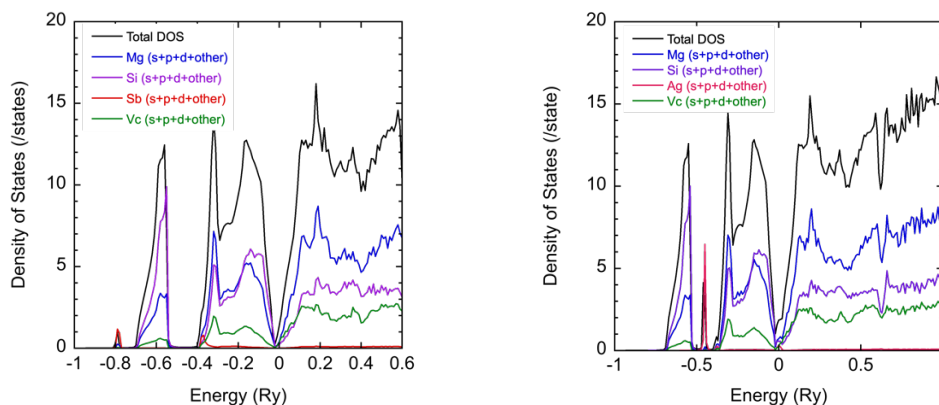


図 1. (左) Sb 0.5 at.% および (右) Ag 0.5 at.% ドープ系の状態密度。

AlGaAs/GaAs 系二次元電子ガスにおける熱電出力因子制御

Controlling thermoelectric power factor of two-dimensional electron gas system in AlGaAs/GaAs

阪大院基礎工¹, 阪大 OTRI², 物材機構³ ○上松 悠人¹, 石部 貴史^{1,2}, 間野 高明³, 大竹 晃浩³,
中村 芳明^{1,2}

Eng. Sci. Osaka Univ.¹, OTRI Osaka Univ.², NIMS.³,

○Yuto Uematsu¹, Takafumi Ishibe^{1,2}, Takaaki Mano³, Akihiro Ohtake³, Yoshiaki Nakamura^{1,2}

E-mail: u261990k@ecs.osaka-u.ac.jp

【背景】IoT センサ用自立電源として薄膜熱電材料が注目されている。これまで、二次元電子ガス (2DEG) は、劇的に高い熱電出力因子 ($S^2\sigma$) をもたらすため、盛んに研究されてきた。近年、ド・ブロイ波長に対して電子閉じ込め幅を狭めると顕著な量子閉じ込め効果が表れ、大幅にゼーベック係数 (S) が増大することが報告された[1]。その他にも AlGaN/GaN 系 2DEG におけるフォノンドラッグ効果による S 増大等、様々な S 増大機構が提案されている[2]。しかし、実験と理論の両面から実証した例は少なく、明確な機構理解は進んでいない。本研究では、長いド・ブロイ波長を有する GaAs に注目し、電子の閉じ込め幅が明確に定義される矩形量子井戸 AlGaAs/GaAs の 2DEG を用いて、 $S^2\sigma$ 増大効果を実験と理論の両面から明らかにし、量子閉じ込め効果による S 増大と変調ドーピングによる移動度増大の同時実現を目指す。

【方法】超高真空中にて分子線エピタキシー法により、矩形井戸型ポテンシャル中に電子を閉じ込めた AlGaAs/GaAs 2DEG を作製した。このとき、2つの AlGaAs 層に挟まれた 2DEG を形成する Undoped GaAs 層の厚みを調整することで、AlGaAs/GaAs 2DEG の電子閉じ込め幅を制御した。また、n-type AlGaAs 層と Undoped GaAs 層の間の Undoped AlGaAs 層の厚みを調整することで、AlGaAs/GaAs 2DEG のキャリア密度を制御した。熱電特性評価には ZEM-3 (アドバンス理工)、自作ホール効果・4 探針測定装置を用いた。

【結果】AlGaAs/GaAs 2DEG において、電子閉じ込め幅を狭めることにより、 S が増大する傾向を観測した (Fig. 1)。さらに、熱電特性の電子閉じ込め幅依存性とキャリア密度依存性を取得することで、 $S^2\sigma$ 増大が量子閉じ込め効果と変調ドーピング効果の相乗効果で説明できることを示した。本講演では、AlGaAs/GaAs 2DEG における $S^2\sigma$ 増大とその増大機構について詳述する。

【謝辞】試料作製に協力頂いた NIMS の宮崎英樹氏、笠谷岳士氏に感謝する。本研究の一部は、科研費 基盤研究 A (23H00258)、特別研究員奨励費 (T22KJ20520) の支援により行われた。

【参考文献】 [1] N. T. Hung, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 036602 (2016). [2] A. S. Yalamarthy, *et al.*, *Nano Lett.* **19**, 3770 (2019).

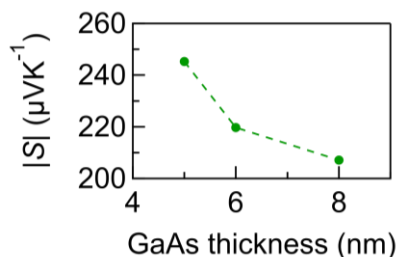


Fig. 1: GaAs thickness dependence of $|S|$ value in AlGaAs/GaAs 2DEG.

巨大横ゼーベック係数獲得へ向けたエピタキシャル Fe₃Si 薄膜/Si の組成比制御

Composition ratio control of epitaxial Fe₃Si film/Si for acquiring giant transverse Seebeck coefficient

阪大院基礎工¹, 阪大 OTRI², 名大未来研³

北浦 怜旺奈¹, 石部 貴史^{1,2}, 水口 将輝³, 中村 芳明^{1,2}

Eng. Sci. Osaka Univ.¹, OTRI Osaka Univ.², IMASS, Nagoya Univ.³

Reona Kitaura¹, Takafumi Ishibe^{1,2}, Masaki Mizuguchi³, Yoshiaki Nakamura^{1,2}

E-mail: u375896c@ecs.osaka-u.ac.jp

[背景・目的] 近年、Internet of Things 社会の実現に向け、熱電変換を用いた自立型電源の開発が熱心に行われている。異常ネルンスト効果を利用した熱電変換デバイスは、温度勾配に対して、垂直方向に出力電圧を得られる特徴を持ち、ゼーベック効果を利用した熱電デバイスに比べて集積化が比較的簡易であるといった利点を持つ[1]。このため、異常ネルンスト効果を発現する磁性熱電材料が注目を集めている。近年、フェルミエネルギー付近にベリー曲率を持つ材料が巨大な横ゼーベック係数を示すと報告された[2,3]。その中で、我々は、安価・無毒・豊富な元素から構成され、かつフェルミエネルギー付近にベリー曲率を有し、理論的に巨大な横ゼーベック係数が予想される Fe₃Si に着目した。先行研究で、Fe₃Si はベリー曲率に由来する横ゼーベック係数の指針である横熱電伝導率が 2.5 A/mK と巨大な値を示すことが報告された[3]。また、多結晶 Fe₃Si 薄膜は 1.0 μV/K と比較的大きな横ゼーベック係数を示すことが報告された[4]。しかし、これは多結晶薄膜であるため、構造の規則度が低く、Fe₃Si の電子状態に由来する特性は得られていない可能性がある。本研究では、巨大な横ゼーベック係数の獲得を目指し、エピタキシャル Fe₃Si 薄膜を作製して、組成比制御により構造の規則度と横ゼーベック係数の関係を明らかにすることを目的とする。

[実験方法] 分子線エピタキシー法を用いて、Si 基板上に 130°C で Fe, Si を同時に蒸着した。構造評価には、X 線回析法、ラマン分光法、走査型電子顕微鏡法(SEM)、反射高速電子回折法(RHEED)を、熱電特性評価には、物理特性測定装置 (PPMS)、四端子法を用いた。

[結果] RHEED により、構造評価したところ、Fe₃Si(111)薄膜が Si(111)基板上にエピタキシャル成長していることが分かった。組成比を変調した試料の横ゼーベック係数を評価したところ、Fe:Si=3:1 に近づくにつれて横ゼーベック係数が増大することが明らかとなった。本講演で組成に依存する規則度と横ゼーベック係数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)、特別研究員奨励費 (T22K22080)、基盤研究 (S) (21H0516)の支援にて行われた。

[引用] [1] R. Kitaura, et al, *Appl. Phys. Express* **14**, 075002 (2021). [2] Guin et al., *NPG Asia Materials* **11**, 16 (2019). [3] A. Sakai et al, *Nature* **581**, 53 (2020). [4] Y. Hamada et al, *Appl. Phys. Lett.* **119**, 152404 (2021).

Ge 空孔量制御したエピタキシャル GeTe 薄膜/Si の熱電特性

Thermoelectric characteristics of epitaxial GeTe thin film

with controlled Ge vacancy amount/Si

阪大院基礎工¹, 阪大 OTRI², 滋賀医科大³, 産総研⁴, 阪大院工⁵

○石部 貴史^{1,2}, 成瀬 延康³, 目良 裕³, 山下 雄一郎⁴, 大石 佑治⁵, 中村 芳明^{1,2}

Eng. Sci. Osaka Univ.¹, OTRI Osaka Univ.², Shiga Univ. Medical Science³, AIST⁴, Eng. Osaka Univ.⁵

○Takafumi Ishibe^{1,2}, Nobuyasu Naruse³, Yutaka Mera³, Yuichiro Yamashita⁴, Yuji Ohishi⁵,

Yoshiaki Nakamura¹

E-mail: ishibe.takafumi.es@osaka-u.ac.jp

【背景】 Si 基板上薄膜熱電材料は、IoT センサ用自立電源として期待されている。熱電変換の性能は、無次元性能指数 ZT ($ZT=S^2\sigma T/\kappa$; S : ゼーベック係数、 σ : 電気伝導率、 κ : 熱伝導率、 T : 絶対温度) で評価され、 S と σ の増大、 κ の低減が求められる[1]。しかし、これら 3 物性値のトレードオフ関係のために ZT 向上は長年の課題であった。近年、潜在的に低い κ と高縮重度による高い S が期待される GeTe 熱電材料が盛んに研究されている[2,3]。こうした GeTe 熱電材料の研究において、アクセプタとして働く Ge 空孔由来の高いキャリア密度が最大の課題である。また、エピタキシャル GeTe 薄膜の熱電特性の報告例は無い。そこで本研究では、Te の高い揮発性に注目して高真空下での成長温度制御により Ge 空孔量を調整したエピタキシャル GeTe 薄膜/Si 基板を作製し、その熱電特性を明らかにすることを目的とする。

【方法】 高真空環境下 (3×10^{-6} Pa) にてパルスレーザー蒸着法を用いて GeTe 薄膜を Si(111)基板上に成長した。この際、基板温度を 473-593 K の範囲で変えて 4 種類の試料を作製した。構造観察には、走査型電子顕微鏡法 (SEM)、透過型電子顕微鏡法 (TEM) を用いた。熱電特性評価には、Advance-Riko 製 ZEM-3、自作電気特性評価装置 (Van der Pauw 法、ホール効果測定法) を、 κ 測定には、自作 Time domain thermoreflectance 測定装置を用いた。

【結果】 基板温度が高いほど、Te の揮発が激しいため、Ge の析出が顕著に見られた。一方で 523 K 以下で成長した場合、GeTe 薄膜が Si(111)基板上にエピタキシャル成長することがわかった。この薄膜の熱電特性を評価したところ、本研究のエピタキシャル GeTe 薄膜は、先行研究と比較して低いキャリア密度を有し、さらに、多結晶 GeTe 薄膜よりも高い移動度を示した[4]。これらは、Te の揮発を適切に調整したことによる Ge 空孔量の減少、及びエピタキシャル成長由来のコヒーレント電子輸送にそれぞれ起因する。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】 本研究の一部は科研費 基盤研究 A (JP23H00258、JP21H04654)、若手研究 (JP21K14536) 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] J. Li, et al., *Joule* **2**, 976 (2018)., [3] S. Imam, et al., *Adv. Energy Mater.* **12**, 2103385 (2022)., [4] T. Ishibe, et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15**, 26104 (2023).

 CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.13] Code-sharing Session of 12.5 & 13.9 & 16.3

[21a-D903-1 ~ 10] CS.13 Code-sharing Session of 12.5 & 13.9 & 16.3

Yasuhiro Shirai(NIMS), Ryuji Kaneko(Enecoat)

Thu. Sep 21, 2023 9:00 AM - 11:45 AM D903 (TKP)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

-
- [21a-D903-1] **Wide-bandgap Perovskite Solar Cells for Multi-junction Solar Cells**
 ○Fumiyasu Awai¹, Yusuke Ohteki², Takashi Koida³, Maxime Giteau⁴, Stephane Collin⁴, Jean-Francois Guillemoles⁵, Yoshitaka Okada², Takaya Kubo², Hiroshi Segawa^{1,2}
 (1.UTokyo Arts &Sci., 2.UTokyo RCAST, 3.AIST, 4.CNRS-C2N, 5.CNRS-IPVF)
 9:00 AM - 9:15 AM
- ▲[21a-D903-2] **All perovskite tandem solar cells employing indium zinc oxide interconnect**
 ○(PC)Gaurav Kapil^{1,2}, Yasuhiro Fujiwara¹, Qing Shen¹, Hiroshi Segawa², Shuzi Hayase¹
 (1.Uni. of Electr.Comm., 2.Uni. of Tokyo)
 9:15 AM - 9:30 AM
- [21a-D903-3] **Elucidation of compositional and underlayer-induced dependence of charge transport property in Br-rich widegap perovskite**
 ○Ryosuke Nishikubo^{1,2}, Yieon Park¹, Akinori Saeki^{1,2} (1.Osaka Univ., 2.ICS-OTRI Osaka Univ.)
 9:30 AM - 9:45 AM
- [21a-D903-4] **High-voltage inverted perovskite solar cells based on a wide-bandgap perovskite**
 ○Youhei Numata¹, Naoyuki Shibayama², Tsutomu Miyasaka^{2,1} (1.RCAST, 2.Toion Univ.)
 9:45 AM - 10:00 AM
- △[21a-D903-5] **Light-induced phase separation in mixed halide perovskite thin film investigated by space- and time-resolved photoluminescence spectroscopy**
 ○(M2)Yusuke Daikoku¹, Takumi Yamada¹, Ai Shimazaki¹, Tomoya Nakamura¹, Ryuji Kaneko¹, Hideki Hirori¹, Atsushi Wakamiya¹, Yoshihiko Kanemitsu¹ (1.ICR, Kyoto Univ.)
 10:00 AM - 10:15 AM
- ▼[21a-D903-6] **Influence of Substrates on CsPbBr₃ Perovskite Deposited by Solution Process, a Step to Photon Up-conversion Solar Cells.**
 ○(D)Hambalee Mahamu¹, Yoshida Koichiro¹, Shigeo Asahi¹, Takashi Kita¹ (1.Kobe Univ.)
 10:30 AM - 10:45 AM
- [21a-D903-7] **Formation of perovskite films on textured Si surfaces formed by MPAT**
 ○Pengyu Yang¹, Peng Liu², Thi Cam Tu Huynh¹, Md. Shahiduzzaman², Tetsuya Taima²

, Keisuke Ohdaira¹ (1.JAIST, 2.Kanazawa Univ.)

10:45 AM - 11:00 AM

[21a-D903-8] Investigation of the hydrogen evolution of perovskite solar cells with the annealed MoO₃ layer

○Ryotaro Fujita¹, Rin Kawanabe¹, Yudai Kikuchi¹, Keito Hisatsune¹, Yuto Komazawa¹, Shinsuke Miyajima², Takuro Murakami³, Atsushi Kogo³, Shiro Uchida¹ (1.Chiba Inst, 2.Tokyo Tech, 3.AIST)

11:00 AM - 11:15 AM

▲[21a-D903-9] Investigation of the Mechanisms behind Enhanced Efficiency and Thermal Stability in Tin-Lead (SnPb) Perovskite Solar Cells

○(P)Shahrir Razey Sahamir¹, Gaurav Kapil¹, Takeru Bessho², Hiroshi Segawa², Qing Shen¹, Shuzi Hayase¹ (1.Univ. of Electro-com, 2.Univ. of Tokyo)

11:15 AM - 11:30 AM

▲[21a-D903-10] Light illumination stability improvement for Sn-Pb mixed perovskite solar cells through surface modification

○(DC)Yulu He^{1,2}, Md. Emrul Kayesh¹, Muhammad Monirul Islam², Wasif Chowdhury¹, Towhid Hossain Chowdhury¹, Md. Abdul Karim¹, Siliang Cao^{1,2}, Takeaki Sakurai², Ashraful Islam¹ (1.NIMS, 2.Univ. of Tsukuba)

11:30 AM - 11:45 AM

多接合化へ向けたワイドバンドギャップペロブスカイト太陽電池の構築

Wide-bandgap Perovskite Solar Cells for Multi-junction Solar Cells

東大総¹, 東大先端研², 産総研³, CNRS-C2N⁴, CNRS-IPVF⁵ ◦栗井 文康¹, 橋木 悠亮², 鯉田 崇³,
Maxime Giteau⁴, Stéphane Collin⁴, Jean-François Guillemoles⁵, 岡田 至崇², 久保 貴哉², 瀬川 浩司^{1,2}

UTokyo Arts & Sci.¹, UTokyo RCAST², AIST³, CNRS-C2N⁴, CNRS-IPVF⁵ ◦Fumiyasu Awai¹,
Yusuke Ohteki², Takashi Koida³, Maxime Giteau⁴, Stéphane Collin⁴, Jean-François Guillemoles⁵,
Yoshitaka Okada², Takaya Kubo², Hiroshi Segawa^{1,2}

E-mail: awai@dsc.rcast.u-tokyo.ac.jp

ペロブスカイト太陽電池は次世代太陽電池の一つとして注目を集めており、1Sun 照射下で約 26%の高い光電変換が報告されている。また、バンドギャップの制御が容易であることからタンデム太陽電池のサブセルとしても活用されており、シリコン太陽電池や色素増感太陽電池など様々な太陽電池との組み合わせが報告されている。本研究では、ペロブスカイト - GaAs タンデム太陽電池 (Fig.1) へ向けたワイドバンドギャップペロブスカイト太陽電池を構築するために、光学シミュレーションによって最適なバンドギャップを算出すると共に、タンデム太陽電池の試作を行ったので報告する。

光学シミュレーションは、MATLAB[®]上のプログラムにおいて行った。Fig.1 に示すように GaAs ボトムセル p 層上に広帯域透過性の透明導電膜 (水素ドープ In₂O₃: IOH) を介してペロブスカイトトップセル (電子輸送層(TiO₂) / ペロブスカイト層 / ホール輸送層 (spiro-MeOTAD) / 透明導電膜(IOH)) を積層する構造をモデルとした。Fig.2 に光学シミュレーションによって算出された各層の吸収および透過・反射の割合を示す。ここに示した吸収率に 1SUN(AM1.5G)での各波長の光子数をかけ合わせて積算することで、ペロブスカイト部分および GaAs 部分での短絡電流密度 (J_{sc}) を求めた。この時、内部量子収率を 95%と仮定した。Fig.3 に示すように 2.0eV 程度のバンドギャップにおいて電流マッチングがとれることが分かった。

ペロブスカイトセルの作製においては、ホルムアミジニウム(FA)、メチルアンモニウム (MA)、およびカリウム (K) を用いたトリプルカチオン型のペロブスカイト (FA_{0.81}MA_{0.14}K_{0.05}PbI_xBr_{3-x}) を用いた。ヨウ素(I)と臭素(Br)の比率(x)を変えることでバンドギャップを、1.76 eV (x=1.75) から 2.09 eV (x=0.05)の間で調整して作製した太陽電池の J_{sc} は、シミュレーション結果と同様な傾向を示した。これらのセルを用いてペロブスカイト - GaAs タンデムセルの作製・評価も行った。

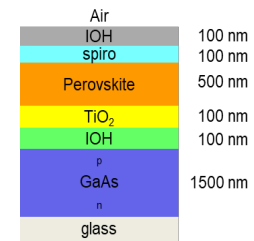


Fig. 1. Tandem solar cell structure

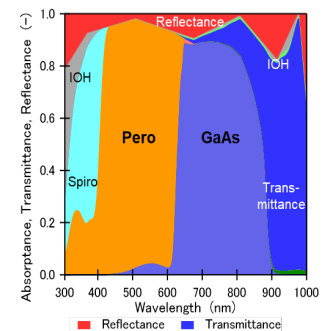


Fig. 2. Absorption of each layer in perovskite-GaAs tandem solar cell (Corresponding to the J_{sc} matching conditions for perovskite and GaAs cells)

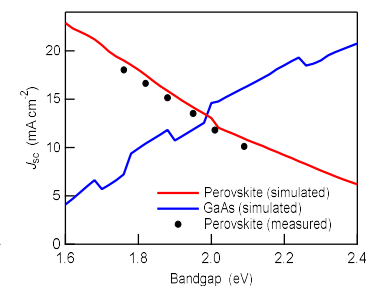


Fig. 3. Simulated and measured J_{sc} depending on bandgap

All perovskite tandem solar cells employing indium zinc oxide interconnect

The University of Electro-Communications¹, The University of Tokyo²,

°Gaurav Kapil^{1,2}, Yasuhiro Fujiwara¹, Qing Shen¹, Hiroshi Segawa², Shuzi Hayase¹

E-mail: gauravkapil.ece@gmail.com

Introduction

All perovskite tandem solar cells (APTSCs) are now showing power conversion efficiencies (PCEs) more than the highest reported single-junction perovskite and silicon solar cells [1,2]. The rapid rise in the performance of APTSC can be ascribed to the improvement in the performances of both top (wide bandgap, WBG) and bottom (narrow bandgap, NBG) cells. Recently, the focus has been on the reduction of halide segregation and improvement of open circuit voltage (V_{oc}) in WBG cells which led to an immense increase in V_{oc} of APTSC to 2.2V [2,3]. We noticed that most of the recent reports on efficient APTSCs utilize SnOx (prepared by atomic layer deposition) coated with Au (1-2nm) as an interlayer. However, the optical loss due to the use of Au nanoparticles can't be ignored. Therefore, in this work, we focused on the preparation of indium oxide doped with zinc oxide (IZO) as an interconnecting layer in place of Au nanoparticles to reduce the optical loss and improvement of facile hole and electron recombination at the SnOx layer.

Results and discussion

We obtained PCE of 26.39% for APTSC with a V_{oc} of 1.94V, J_{sc} of 17.18 mA/cm², and FF of 0.79. APTSC employing Au nanoparticle interlayer showed an inferior PCE of 22.32% with a V_{oc} of 1.84V, J_{sc} of 15.4 mA/cm², and FF of 0.79. Moreover, in this work, we will support the increase in device performance with the use of different IZO interconnect by evaluating the carrier mobility, diffusion length, charge transport time, and recombination time.

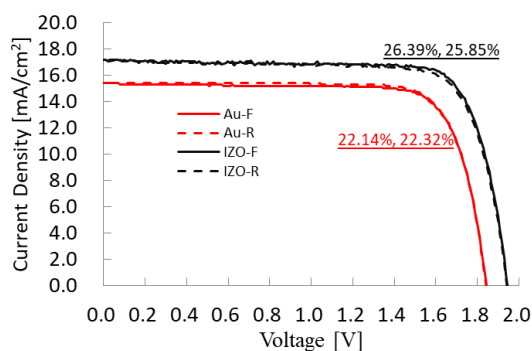


Figure 1. Current-voltage characteristics of different solar cells fabricated.

References

1. <https://www.nrel.gov/pv/cell-efficiency.html>, NREL chart accessed on 6th June.
2. Q. Jiang and K. Zhu et al, Compositional texture engineering for highly stable wide-bandgap perovskite solar cells, *Science*, 378, 1295–1300 (2022).
3. H. Chen and E. H. Sargent et al, Regulating surface potential maximizes voltage in all-perovskite tandems, *Nature*, 613, 676–681 (2023).

ワイドギャップペロブスカイトにおける組成・足場材料と電荷輸送特性との相関解明 Compositional and Underlayer Dependence on Crystallinity and Charge Dynamics of Lead Halide Perovskite

阪大院工¹, 阪大 ICS-OTRI², °西久保 綾佑^{1,2}, Yieon Park¹, 佐伯 昭紀^{1,2}

Osaka Univ.¹, Osaka U. ICS-OTRI², °Ryosuke Nishikubo^{1,2}, Yieon Park¹, Akinori Saeki^{1,2}

E-mail: nishikubo@chem.eng.osaka-u.ac.jp

鉛ハライドペロブスカイト(LHP)は容易な溶液プロセスで作製できる一方で、その成膜過程には組成(AサイトやXサイトの組み合わせ)や添加剤、足場材料など様々な要素が影響し、性能の変化につながる。中でも結晶性や欠陥量は薄膜の電荷移動度や再結合速度に直接的に影響し、素子性能が変化する原因となる。しかしながら、その組成や足場材料と基礎的な電荷ダイナミクスとの相関の包括的な理解には至っていない。そこで、多様なA,Xサイト組成と異なる足場材料の組み合わせにおける結晶性や電荷ダイナミクスを、時間分解マイクロ波伝導度法(TRMC)などの手法を用いて包括的な傾向の解明を試みた。また、無機系添加剤の効果も新たに調査した。

全9通りのLHP組成(Aサイト:FA_{0.8}MA_{0.15}CS_{0.05}, FA_{0.9}CS_{0.1}, FA_{0.85}MA_{0.15}, Xサイト:Br 20%, 33%, 50%)、2種類の足場材料(順型:mp-TiO₂, 逆型:PTAA/PFN-Br)を用いて薄膜を作製し(図a)、X線回折による結晶性評価やTRMCによる電荷ダイナミクス評価などを行った。X線回折では、mp-TiO₂を用いた場合3カチオン(FAMACs)が比較的大きい結晶子サイズを示したのに対し、PTAA/PFN-Brでは2カチオン(FACs)でやや高い結晶性が得られた。さらにTRMC評価では、いずれのBr比においても、mp-TiO₂/LHPsではFAMACsで、PTAA/PFN-Br/LHPsではFACsにおいて長いキャリア寿命が得られた(図b)。実際これらの結果は素子性能とも一致することも明らかにした(図c)。^[1]

また、近年有機系および無機系添加剤による性能向上効果が報告されている。本研究では無機系添加剤によるWG型ペロブスカイト素子性能向上効果の発見、および電荷ダイナミクス評価による機構解明も行った(図c)。当日はこれらの結果および考察に関し詳細を述べる。

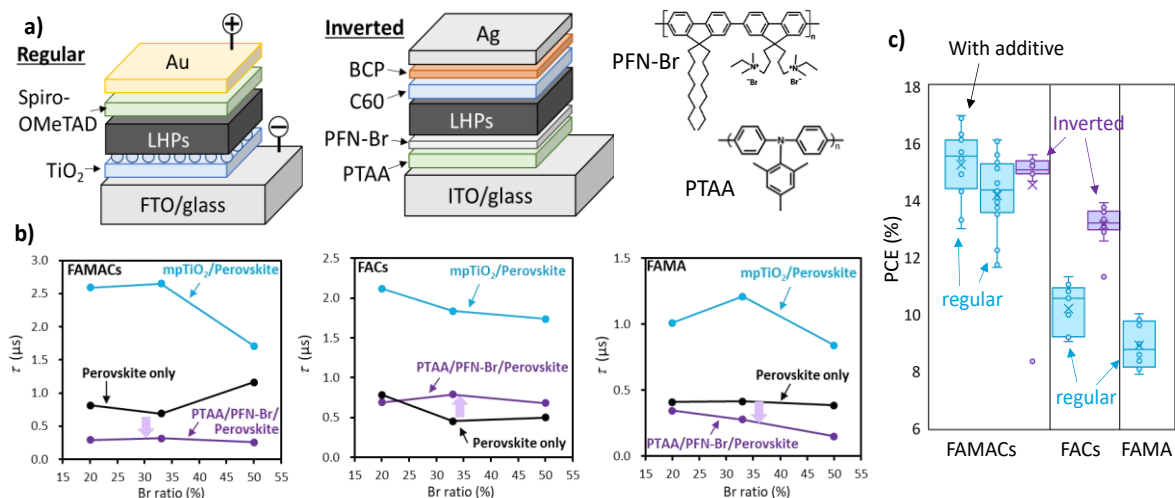


図 a) 素子構造およびPTAA, PFN-Brの分子構造。b) 各A, Xサイトの組み合わせにおけるTRMC信号寿命(τ)。c) Br33%における各LHPの素子性能。

[1] Yieon Park, Ryosuke Nishikubo, Akinori Saeki *J. Photopolym. Sci. Technol.* **2023** accepted.

高電圧-逆構造型ワイドバンドギャップペロブスカイト太陽電池の開発

High-voltage inverted perovskite solar cells based on a wide-bandgap perovskite

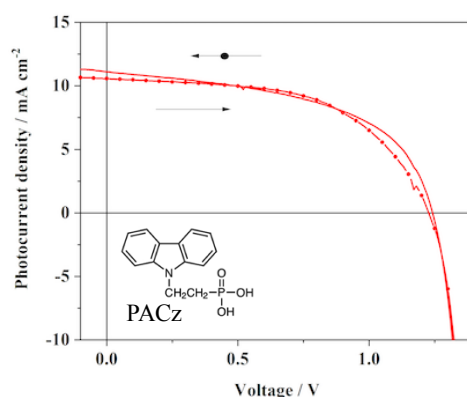
東大先端研¹, 桐蔭大院工² °沼田 陽平¹, 柴山 直之², 宮坂 力^{1,2}RCAST.¹, Toin Univ.², °Youhei Numata¹, Naoyuki Shibayama², Tsutomu Miyasaka^{1,2}

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

[序論] 近年、ペロブスカイト太陽電池の研究開発において、単セルでの高効率化と並んでタンデムセルの研究が精力的に進められている[1,2]。主な組み合わせとしてはシリコン-ペロブスカイト (Si-Pero)とペロブスカイト-ペロブスカイト(Pero-Pero)のタンデムがあり、それぞれにおいて固有の技術やノウハウが必要とされる。Pero-Pero においてはボトムセルに Pb-Sn 混合ペロブスカイトを用いた narrow-bandgap (NBG) cell が用いられる。こちらのデバイスでは基本的に Sn(II)が酸化チタンや酸化スズなどの金属酸化物を用いたキャリア輸送層と相性が悪く、高効率を達成するためには下地に有機化合物である PEDOT:PSS や PACz を用いたいわゆる逆型構造のセルを構築する必要がある。したがって自動的にトップセル (下層) である wide-bandgap (WBG) cell も逆型構造でなければならず、その高効率化、特に高電圧化に関する研究が進められている。

我々はこれまで高電圧を志向して、APbBr₃ や APbIBr₂ (A=カチオン種)などの臭素豊富組成を有する WBG ペロブスカイトを用いた太陽電池の開発を行ってきた[3,4]。最近ではややヨウ素の比率の多い組成を持つ WBG ペロブスカイトに対して添加剤を用いることで光安定性を高めることができることを報告した[5]。今回はデバイス構造を逆構造に変更した上で、更にカチオン種の追加や貧溶媒の工夫によって高効率化を行ったので報告する。

[結果と考察] ペロブスカイト層には FAPbIBr₂ を使い、チオシアン酸イオンと異なる置換基を有する、各種のアンモニウムカチオンを添加剤として用いた。下地層には PACz、電子輸送層には PCBM を用いて逆構造型デバイスを作製した。デバイス特性は添加したカチオン種の形状に大きく影響を受け、現在のところ約 1.3V 程度の Voc が得られた (図 1)。残念ながらやや Jsc が低く、変換効率は 10%程度であり、また、bandgap=1.8 eV からすると電圧ロスが大きいので条件の最適化を進めている。講演ではアンモニウムカチオンの形状と各種光電変換パラメーターとの相関や最適化に関して詳細を報告する予定である。

図 1. FAPbIBr₂ 高電圧セルの J-V 曲線

[References] 1. R. Lin, et al., *Nature*, **2023**, <https://doi.org/10.1038/s41586-023-06278-z>; 2. NREL Best Research-Cell Efficiency Chart. <https://www.nrel.gov/pv/cell-efficiency.html>, June **2023**, accessed; 3. Y. Numata, et al., *JMC A*, **2022**, *10*, 672; 4. 第 83 回 応用物理学会 秋季学術講演会 22p-B103-12; 5. 第 70 回 応用物理学会 春季学術講演会 15a-A401-4.

時空間分解発光分光による
混晶ハライドペロブスカイト薄膜の光誘起相分離の研究
Light-induced phase separation in mixed halide perovskite thin film
investigated by space- and time-resolved photoluminescence spectroscopy

京大化研

○(M2)大穀 裕介, 山田 琢允, 嶋崎 愛, 中村 智也,
金子 竜二, 廣理 英基, 若宮 淳志, 金光 義彦

ICR, Kyoto Univ

○Yusuke Daikoku, Takumi Yamada, Ai Shimazaki, Tomoya Nakamura,
Ryuji Kaneko, Hideki Hirori, Atsushi Wakamiya, and Yoshihiko Kanemitsu

E-mail: daikoku.yusuke.83r@st.kyoto-u.ac.jp

ハロゲン化金属ペロブスカイトは高効率な光デバイス材料として近年広く注目を集めている[1]。その基本的な組成は ABX_3 [$A = Cs, CH_3NH_3 (MA), HC(NH_2)_2 (FA), B = Pb, Sn, X = I, Br, Cl$] で表される。この材料では A, B, X のすべてのサイトで組成の混合によるバンドギャップ制御が可能である。特に X サイトに I と Br を用いた系がタンデム型太陽電池のトップセル材料として精力的に研究されている[2]。しかし、ハロゲン混晶系では連続的な光照射によって発光スペクトルが大きく変化する事が知られており[3]、ハロゲン化物イオンの移動による I 相と Br 相の形成が原因として議論されている[4]。この光誘起の相分離現象は太陽電池の安定性に直結する課題であると同時に、基礎光物理からも非常に興味深い現象である。特に、スピコート法を用いて作製されるペロブスカイト薄膜にはグレイン構造などの空間不均一性が存在し、それらと相分離の関係についても明らかにする必要がある。

そこで本研究では、ハイパースペクトルイメージング分光測定を $Cs_{0.15}FA_{0.85}PbI_xBr_{3-x}$ ($x = 1.5-2$) 薄膜に対して行い、相分離の空間分布やその時間変化を測定した。励起光を局所的に照射しながら発光スペクトルの空間分布の変化を観測したところ、照射スポットとその周辺において低エネルギー側の発光強度が相対的に増大し、さらに外側では高エネルギー側の発光強度が相対的に増大した。これは光照射スポットよりも大きな空間スケールでの光誘起イオン移動を示している。また、電極上に成膜した試料に対しても測定し、電場印加に応じて発光スペクトルの空間分布が変化するのを確認した。その印加電場依存性から移動イオンの同定を試みた。さらに講演では各サイトの組成比依存性の測定を行い、相分離との相関について詳細に議論する。

本研究は、科研費特別推進研究(JP19H05465)、JST-CREST (JPMJCR21B4)、NEDO-GI (JPNP21016) の援助による。

- [1] Y. Kanemitsu and T. Handa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 090101 (2018); T. Yamada, T. Handa, Y. Yamada, and Y. Kanemitsu, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 383001 (2021).
- [2] F. Fu *et al.*, *Adv. Mater.* **34**, 2106540 (2022).; P. Wu *et al.*, *ACS Cent. Sci.* **9**, 14–26 (2023).
- [3] E. T. Hoke *et al.*, *Chem. Sci.* **6**, 613–617 (2015).
- [4] M.C. Brennan *et al.*, *ACS Energy Lett.* **3**, 204–213 (2018).

Influence of Substrates on CsPbBr₃ Perovskite Deposited by Solution Process, a Step to Photon Up-conversion Solar Cells.

Grad. Sch. of Eng. Kobe Univ., °Hambalee MAHAMU, Koichiro YOSHIDA, Shigeo ASAHI, and Takashi KITA

E-mail: 203t268t@stu.kobe-u.ac.jp

In 2017, two-step photon up-conversion solar cells (TPU-SCs) were experimentally achieved after the theoretical study has been proposed. The TPU-SCs are single-junction solar cells consisting of two different bandgap semiconductors functioning as main light absorbers. A wider semiconductor is deposited on top of a narrow one to create band discontinuity at the heterointerface. In practice, Al_{0.3}Ga_{0.7}As and GaAs form the heterointerface where a layer of InAs quantum dots (QDs) are grown aiming to relax the optical selection rule. In other words, the existence of InAs QDs induces in-plane electronic transition which allows below-bandgap photon absorption, hence, the intraband excitation in addition to the interband excitation in the main absorbers [1].

It is interesting to apply the same idea to perovskite/III-V semiconductor-based hybrid photon up-conversion solar cells. The reasons are the increase in popularity of perovskite semiconductors due to their exceptional optoelectronic properties. This might improve energy conversion efficiency in general. Moreover, the study of the influence of the perovskite-GaAs interface on the photon up-conversion process might lead to new interesting physics. Hence, we came up with the idea of CsPbBr₃/GaAs-based photon up-conversion solar cells. The reasons for the utilization of CsPbBr₃ is the extraordinary optoelectronic properties and stability over all perovskites that have been reported so far [2].

We started our fabrication by studying the effect of substrate on morphological, structural, and optical properties since the deposition of CsPbBr₃ is almost done on glass substrates with transparent electrodes. We synthesize CsPbBr₃ film using multistep spin coating [3] deposited on crown glass and GaAs substrates. We varied the number of CsBr deposition times and study the properties of CsPbBr₃ film.

CsPbBr₃ films deposited on glass substrates with CsBr deposition times of 5, 6, and 7 indicate yellowish semi-transparent films. The morphology of CsPbBr₃ films show a smooth surface with good coverage. In addition, with an increasing number of CsBr deposition times, the surface

gradually becomes rough. However, UV-visible spectrograms demonstrate the highest absorbance when CsBr solution was dropped 6 times. Photoluminescence (PL) spectra coincide with the absorption spectra since PL intensity is the largest for the sample with 6 times CsBr deposition.

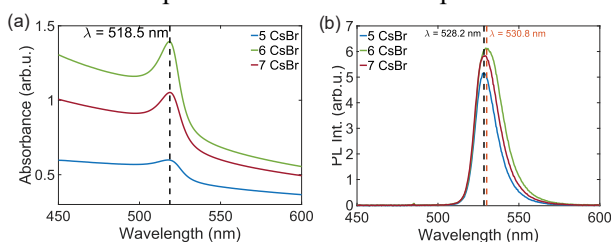


Fig.1 Absorption (a) and PL (b) spectra of CsPbBr₃ deposited on crown glass substrates with various CsBr deposition times.

The same fabrication recipe was used to grow CsPbBr₃ films on i-GaAs (001) substrates. We observed that the morphology of the films is different from the ones on the glasses. CsPbBr₃ the surface of GaAs shows worse coverage which might be caused by the different wettability of GaAs and the crystal properties of GaAs. The UV-visible spectrograms indicate relatively weak exciton absorption differently from CsPbBr₃ films on glasses. Note, that the measurement was done by measuring reflectance since GaAs is opaque for UV-visible light. Therefore, the scattering might have a strong effect on the absorption spectra. Meanwhile CsPbBr₃ film on glass with 6 deposition cycles shows the highest absorption, the same condition applied on GaAs substrates indicates less absorption than 5 deposition cycles. This coincides PL spectra of CsPbBr₃ on GaAs which show relatively small emissions.

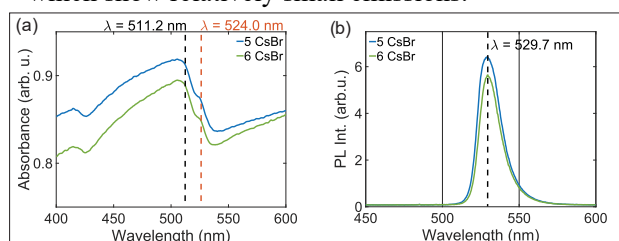


Fig.2 Absorption (a) and PL (b) spectra of CsPbBr₃ deposited on GaAs substrates with various CsBr deposition times.

Reference:

- [1] S. Asahi, H. Teranishi, K. Kusaki, T. Kaizu, T. Kita: Nat. Comm., 8 (2017).
- [2] S. Ullah et al., Mater. Adv., 2, 646-683 (2021).
- [3] J. Yan et al., Sol. Energy Mater. Sol., 234 (2022).

MPAT により Si ウェハ表面に形成したテクスチャへの ペロブスカイト成膜

Formation of perovskite films on textured Si surfaces formed by MPAT

○北陸先端大¹, 金沢大², Yang Pengyu¹, Liu Peng², Huynh Thi Cam Tu¹,

Md. Shahiduzzaman², 當摩 哲也², 大平 圭介¹

JAIST¹, Kanazawa Univ.², Pengyu Yang¹, Peng Liu², Huynh Thi Cam Tu¹,

Md. Shahiduzzaman², Tetsuya Taima², Keisuke Ohdaira¹

E-mail: s2210178@jaist.ac.jp

【緒言】 アルカリ溶液での Si ウェハへのテクスチャ形成において、従来法では、ウェハ表面に付着した H₂ バブルがエッチングの進行を妨げ、テクスチャの粗大化やサイズの不均一化が起こる問題があった。また、タンデムセルへの応用を目的にテクスチャ上にペロブスカイト膜を形成する際には、粗大なピラミッドの頂点や谷を均一に覆うことが困難となる。我々は KOH 溶液に添加したガラス粒子により水素バブルを物理的に破壊し、均一な微小ピラミッドを形成できる microparticle-assisted texturing (MPAT)を開発した[1]。今回は MPAT における薬液の回転速度やガラス微粒子の混入量がテクスチャサイズに与える影響を調査し、また、得られた Si 表面へのペロブスカイト成膜を試みたので報告する。

【実験】 直径~100 μm のガラス粒子を KOH ベースの溶液 SUN-X600 と H₂O の混合液の中に入れ、ホットプレートで 83 °C に加熱し、スターラーで回転させながら、RCA 洗浄後の 2×2 cm² の両面鏡面研磨 Si(100)ウェハ表面を 10 分間エッチングした。その後、90 °C の超純水で洗浄した。最後に、Si ウェハ表面に塗布法でヨウ化鉛メチルアンモニウム(MAPbI₃)を成膜した。走査電子顕微鏡(SEM)によりテクスチャ表面と断面の観察を、紫外可視近赤外分光光度計で反射率測定を行った。

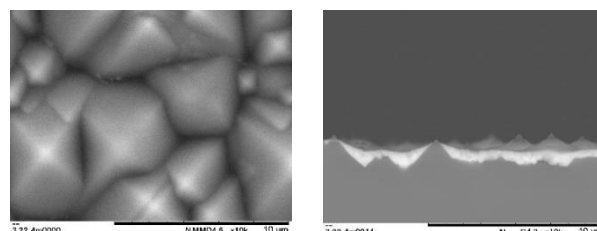


Fig. 1 SEM image of textured Si surface formed by MPAT and cross-sectional SEM image of MAPbI₃/textured Si. MPAT was performed at a rotation speed of 250 rpm with 5.6 wt% glass beads.

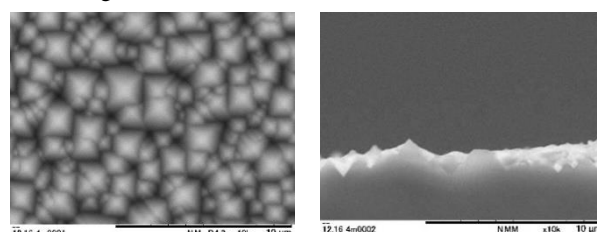


Fig. 2 SEM image of textured Si surface formed by MPAT and cross-sectional SEM image of MAPbI₃/textured Si. MPAT was performed at a rotation speed of at a rotation speed of 1000 rpm with 0.5 wt% glass beads.

【結果・考察】 Fig. 1 および Fig. 2 に、スターラーの回転速度 250 および 1000 rpm での MPAT により形成したテクスチャの表面 SEM 像とペロブスカイト成膜後の断面 SEM 像を示す。前者では、粗大なピラミッドが多く形成され、頂点が覆われていない箇所も多い。一方後者では、微小テクスチャが支配的な表面が形成され、製膜されていない箇所も減少している。発表では、テクスチャの形成条件の最適化についても報告する予定である。

【参考文献】 [1] C. T. Nguyen et al., J. Mater. Res. 33, 1515 (2018).

アニール処理された MoO_3 膜を有するペロブスカイト太陽電池を用いた水素生成検討

Investigation of the hydrogen evolution of perovskite solar cells with the annealed MoO_3 layer

千葉工大¹, 東工大², 産総研³, 藤田凌太郎¹, 川鍋凜¹, 菊池優大¹, 久恒圭人¹,

駒澤雄飛¹, 宮島晋介², 村上拓郎³, 古郷敦史³, 内田史朗¹

Chiba Inst¹, Tokyo Tech², AIST³, Ryotaro Fujita¹, Rin Kawanabe¹, Yudai Kikuchi¹, Keito Hisatsune¹,

Yuto Komazawa¹, Shinsuke Miyajima², Takurou N. Murakami³, Atsushi Kogo³, Shiro Uchida¹

E-mail: s18A3113CN@s.chibakoudai.jp

近年、化石燃料に代わる新たなエネルギー源、太陽光発電で得られた過剰電力による出力制御の課題解決に対しての貯蔵エネルギー源として水素が注目されている^[1]。水分解 EC セルの最適動作電圧約 1.5 V に対してペロブスカイト(PVK)/Si タンデム太陽電池の動作電圧は約 1.5~1.7 V が期待できる。PVK/Si タンデム太陽電池では PVK 側から太陽光を取り込む為、ITO 等の透明導電膜が必要不可欠である。その場合、ITO 成膜時のスパッタダメージへの保護膜として正孔輸送層上に MoO_3 などを成膜する必要があると考えられる。

本研究では、最終目標として PVK/Si タンデム太陽電池を作製するが、前過程としてペロブスカイト太陽電池(PSC)に MoO_3 を成膜し、アニール処理等によりその保護膜としての機能性評価と水素生成実験を行った。

ITO 基板上に SnO_2 電子輸送層を成膜し、 $\text{Cs}_{0.05}(\text{FA}_{0.83}\text{MA}_{0.17})_{0.95}\text{Pb}(\text{I}_{0.83}\text{Br}_{0.17})_3$ ペロブスカイトを文献^[2]に従い成膜した。これに正孔輸送層である spiro-OMeTAD 層を成膜した。さらに MoO_3 と Au 電極を真空蒸着し(図 1)、光電変換特性を評価した。PSC の動作電圧は約 0.6 V であった為、水分解を行なう為に外部電源により 0.9 V 加え、約 1.5 V になるよう調整した。その後、疑似太陽光を 60 分間照射し水分解を行い、太陽光水素エネルギー変換効率 STH (solar to hydrogen)を求めた。

図 2 に MoO_3 を成膜した PSC の電流密度-電圧曲線を示す。また、本実験で得られた STH は 2.4%であった。PSC の性能を比較すると、 MoO_3 蒸着後は非常に低い変換効率を示したが、アニール処理により短絡電流密度が改善し、変換効率 12.0%まで上昇した。 MoO_3 が高抵抗層として作用したが、アニール処理を行うことで低抵抗化が進んだと考えられる。

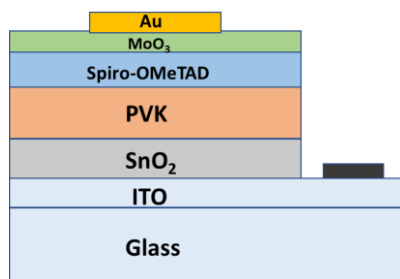


Fig 1 Structure of perovskite solar cell

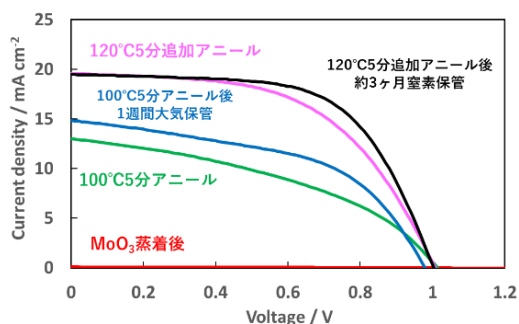


Fig 2 Photocurrent density-voltage curves of PSC with the annealed MoO_3 layer

[1] N. Akihiro et. al, Appl. Phys. Express, 2015, 8, 107101.

[2] M. Saliba et. al, Energy Environ. Sci., 2016, 9, 1989.

Investigation of the Mechanisms behind Enhanced Efficiency and Thermal Stability in Tin-Lead (SnPb) Perovskite Solar Cells

The Univ. of Electro-Communications¹, Univ. of Tokyo², [○][Shahrir Razez Sahamir](mailto:shahrir@uec.ac.jp)^{1*}, Gaurav Kapil¹, Takeru Bessho², Hiroshi Segawa², Qing Shen¹, Shuzi Hayase¹
E-mail: shahrir@uec.ac.jp, hayase@uec.ac.jp

In the latest studies, the enhancement in terms of the performance and the stabilities of the tin-lead (SnPb) perovskite solar cells (PSCs) were achieved via addition of a dopant material and interfacial engineering. Doping technique has been used widely in order to improve the performance of the PSCs because doping materials are able to rectify defects and passivate the perovskite surface to produce high efficiency PSCs. Meanwhile, various research has demonstrated positive impact on the performance of the PSCs via interfacial engineering due to the good energy alignment for effective carrier extractions, reduced interfacial recombination and also a barrier for ions migration. However, these strategies are still not well explained especially in term of the stability in the SnPb PSCs. It is well known that the stability of the SnPb PSCs is governed by the presence of the Sn. The easily oxidized Sn component in the SnPb perovskites, especially in high humidity and high ambient temperature makes the SnPb PSCs not reliable and are at disadvantage when competing with other forms of solar cells. The chemical and the physical structure of the perovskite films will be altered upon oxidation which in turn compromising the PSCs performance. However, there are also other factor such as the ions migration which has proven to be harmful in the PSCs. By implementing the above strategies, the highest efficiency of more than 21% along with high photo and thermal stabilities were demonstrated. The SnPb PSCs which was stored in the nitrogen filled air are able to retain more than 99% of their efficiencies after 1 month of storage. In term of thermal stability, the PSCs are able to retain 100% of their initial efficiencies after subjected to the temperature of 85 °C for over 700 hours in nitrogen atmosphere. Our exploratory of the successful treatment of the doping and interlayer engineering were followed with series of investigations which includes the morphological, structural and elemental of the SnPb thin films before and after exposure to thermal heating via SEM, XRD and XPS. We will also demonstrate the effects of doping and interlayer engineering via impedance spectroscopy technique by extracting the electronic parameters in the SnPb PSCs such as the series and recombination resistances, and also the capacitance of the investigated devices which could help to interpret the ionic activities. Our research concludes that the most important factor that prevent the degradation in the SnPb PSCs underlies in the physical barrier that can restrict the ions migration. This valuable knowledge could help us in the fabrication of the SnPb PSCs with high efficiency and excellent performance stabilities.

Light illumination stability improvement for Sn-Pb mixed perovskite solar cells through surface modification

NIMS¹, Univ. of Tsukuba², °(DC) Yulu He^{1,2}, Md. Emrul Kayesh¹, Muhammad Monirul Islam²,

Wasif Chowdhury¹, Towhid Hossain Chowdhury¹, Md. Abdul Karim¹, Siliang Cao^{1,2},

Takeaki Sakurai², Ashraful Islam¹

E-mail: s2130061@s.tsukuba.ac.jp

Perovskite solar cells (PSCs) have attracted much attention because of the fast progress of their power conversion efficiency (PCE), from 3.8% to 25.7% in the past 14 years.[1] However, the highest efficiency of the PSCs is close to the theoretical efficiency limit (around 31 %) of the single junction PSCs. To overcome the efficiency limit of the single junction PSCs. All perovskite tandem solar cells should be focused on. Sn-Pb mixed PSCs are the key points for achieving all perovskite tandem solar cells. Recently, the best Sn-Pb mixed PSCs have achieved over 23 % efficiency.[2] However, the stability of the Sn-Pb mixed PSCs is relatively low compared to pure Pb-based PSCs, which limits the practical use of the tandem solar cells.

Suppression of Sn²⁺ oxidation is one of the most crucial points for achieving high performance and stability of Sn-Pb mixed PSCs. According to recent studies, the Sn²⁺ oxidation is more dominant on the perovskite surface.[3] The oxidation of Sn²⁺ even occurs during the formation of perovskite film in the inert atmosphere.[4] Therefore, suppression of Sn oxidation of the Sn-Pb mixed perovskite surface is important to achieve highly stable Sn-Pb mixed PSCs.

In this work, a Pb-contained solution was used for perovskite surface treatment, leading to improved light illumination stability of Sn-Pb mixed perovskite solar cells.

Figure 1 (a) shows the current density-voltage (J-V) curves of the control and surface-modified PSCs. The power conversion efficiency (PCE) of the control and surface-modified PSCs is 20.8 % and 21.2 %, respectively. The PCE of the control and surface modified PSCs did not present significant variation. However, under light illumination, the control PSCs presented poor stability. The PCE decreased to around 30 % of the initial PCE within 5 hours. On the other hand, the PCE of the surface modified PSCs maintained 80 % of the initial PCE after 50 hours of light illumination. Without surface modification, Sn²⁺ oxidation may easier occur on the perovskite surface. After Pb²⁺-contained solution surface modification, the Pb²⁺ ratio increases due to the introduction of the Pb²⁺, which can suppress the oxidation of the Sn²⁺ on the perovskite surface. Therefore, the surface modified PSCs by the Pb²⁺-contained solution achieved better stability.

In conclusion, the stability of the Sn-Pb mixed PSCs improved significantly compared to the control devices. This work will contribute to developing the stability of Sn-Pb mixed PSCs and all perovskite tandem solar cells.

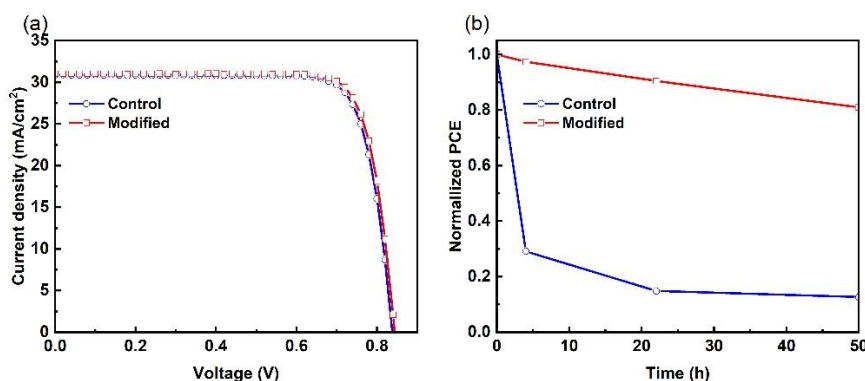


Figure 1. (a) J-V curves, (b) light illumination stability test of the control and the modified PSCs.

References:

- [1] NREL Best Research-Cell Efficiency Chart. [<https://www.nrel.gov/pv/cellefficiency.html>]
- [2] S. Hu, K. Otsuka et al. Energy & Environmental Science, 2022, 15(5): 2096-2107.
- [3] R. M. I. Bandara, S. M. Silva, et al. Energy & Environmental Materials, 2022, 5(2): 370-400.
- [4] R. Lin, J. Xu, et al. Nature, 2022, 603(7899): 73-78.

CS Code-sharing session | Oral presentation | [CS.14] Code-sharing Session of 12.6 & 12.7

[20a-D901-1 ~ 11] CS.14 Code-sharing Session of 12.6 & 12.7

Ayumi Hirano(Tohoku Univ.), Yusuke Arima(Kyusyu Univ.)

Wed. Sep 20, 2023 9:00 AM - 12:00 PM D901 (TKP)

△ : Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

▲ : English Presentation

▼ : Both of Above

No Mark : None of Above

- [20a-D901-1] *Candida* Mannan in saliva detected by plasmon-field enhanced fluorescence imaging
 ○Ryuto Noumi¹, Masaya Yako¹, Yasunori Nawa¹, Keiko Tawa¹, Hiroshi Kurita²
 (1.Kwansei Gakuin Univ., 2.ShinShu Univ.)
 9:00 AM - 9:15 AM
- [20a-D901-2] Post-labeling fluorescence microscopy of single exosomes captured by a plasmonic chip
 ○Makoto Tokami¹, Yasunori Nawa¹, Keiko Tawa¹ (1.Kwansei Gakuin Univ.)
 9:15 AM - 9:30 AM
- ▲[20a-D901-3] Graphene Surface Acoustic Wave Gas Sensor for Effective Detection of Acetone down to Ppt Levels in the Air Atmosphere
 ○Haolong Zhou¹, Sankar Ganesh Ramaraj¹, Hiroyasu Yamahara¹, Hitoshi Tabata¹
 (1.Univ. of Tokyo)
 9:30 AM - 9:45 AM
- △[20a-D901-4] Electrical properties of taste sensor with positively charged lipid membranes composed of amine and ammonium salts
 ○Kentaro Watanabe¹, Tatsukichi Watanabe¹, Shunsuke Kimura², Hidekazu Ikezaki³, Kiyoshi Toko² (1.Grad. Sch. ISEE. Kyushu Univ., 2.R&D Five-Sense Devices, Kyushu Univ., 3.Intelligent Sensor Technology, Inc.)
 9:45 AM - 10:00 AM
- ▲[20a-D901-5] The utilization of piezo-impedance properties of porous MWCNTs-PDMS nanocomposite for remote sensing via wireless power transmission technology
 ○Saman Azhari¹, Kouki Kimizuka², Gabor Mehes¹, Yuki Usami², Yasuhiko Hayashi³, Hirofumi Tanaka², Takeo Miyake¹ (1.Waseda University Graduate School of Information, Production and Systems, 2.Kyushu Institute of Technology, 3.Okayama University)
 10:00 AM - 10:15 AM
- [20a-D901-6] [Young Scientist Presentation Award Speech] Toward point-of-care testing with SATORI
 ○Tatsuya Iida¹, Jun Ando¹, Hajime Shinoda¹, Rikiya Watanabe¹ (1.RIKEN CPR)
 10:30 AM - 10:45 AM
- [20a-D901-7] Highly sensitive protein sensing by protein-imprinted polymer nanogels
 ○Hirobumi Sunayama¹, Chehasan Cheubong², Eri Takano², Toshifumi Takeuchi^{3,4}
 (1.Grad. Sch. of Med., Kobe Univ., 2.Grad. Sch. of Eng., Kobe Univ., 3.Innovation

Commercialization Division, Kobe Univ., 4.AIST PhotoBioOIL)

10:45 AM - 11:00 AM

▲[20a-D901-8] Evaluation of PEDOT:bromocresol purple electrochemical electrodes for determination of human serum albumin by dye-binding interaction

○(PC)Alex ChiWei Tseng¹, Toshiya Sakata¹ (1.Univ. of Tokyo)

11:00 AM - 11:15 AM

[20a-D901-9] Graphene Biosensor Coated with a Gas-Permeable Membrane

○Takao Ono¹, Miho Kannaka¹, Yasushi Kanai^{1,2}, Naruto Miyakawa³, Ayumi Shinagawa³, Shin-ichi Nakakita⁴, Yohei Watanabe⁵, Shota Ushiba³, Shinsuke Tani³, Yasuo Suzuki⁶, Masahiko Kimura³, Daichi Chiba^{1,2,7,8}, Kazuhiko Matsumoto¹ (1.SANKEN, Osaka Univ., 2.OTRI, Osaka Univ., 3.Murata Manufacturing Co., Ltd., 4.Kagawa Univ., 5.Kyoto Pref. Univ. Med., 6.Univ. Shizuoka, 7.CSRN, Osaka Univ., 8.SRIS, Tohoku Univ.)

11:15 AM - 11:30 AM

[20a-D901-10] Visualization of autonomic nervous system activity during sleep by time-series correlation analysis of glucose fluctuation and heart rate variability

○Taira Kajisa¹, Toshiya Kuroi², Hiroyuki Hara² (1.Toyo Univ., 2.Hakuju Institute for Health Science)

11:30 AM - 11:45 AM

[20a-D901-11] Fully wireless electrochemiluminescent biosensor using a smartphone and wireless power transfer

○Eiichi Tamiya^{1,2}, Shuto Osaki¹, Hidenori Nagai¹ (1.AIST PhotoBIO OIL, 2.Osaka Univ. SANKEN)

11:45 AM - 12:00 PM

プラズモン増強蛍光イメージングによる唾液中のカンジダマンナン検出

Candida Mannan in saliva detected by plasmon-field enhanced fluorescence imaging

関西学院大 院理工¹, 信州大 医² °能見 隆登¹, 八子 将也¹, 名和 靖矩¹, 田和 圭子¹,
栗田 浩²

Kwansei Gakuin Univ.¹, Shinshu Univ.², °Ryuto Noumi¹, Masaya Yako¹, Yasunori Nawa¹,

Keiko Tawa¹, and Hiroshi Kurita²

E-mail: ktawa@kwansei.ac.jp

免疫力を迅速かつ定量的に評価することは、医療現場や自宅での体調管理に役立つ。信州大の栗田らによって、口腔カンジダ菌に含まれるカンジダマンナン (CM) を免疫力マーカーに利用できることが示された。先行研究では、ホールアレイ型プラズモニクチップと蛍光顕微鏡イメージングにより、CM 標準溶液の定量評価を行うことができた。また、角度走査型プラズモン増強蛍光測定では、唾液中の CM を定量評価することもできた¹。そこで本研究では、蛍光顕微鏡イメージングにより、唾液中の CM の計測に取り組んだ。プラズモニクチップにおける周期構造のピッチの選択によって、入射 (励起) 波長と検出 (発光) 波長で 0 度付近の低角に共鳴角が表れるよう調整し、励起増強と発光増強効果を得て、高感度検出を目指した。

本研究で使用したプラズモニクチップは、ピッチ 495 nm×475 nm の二次元ホールアレイで、銀薄膜と SiO₂ 膜を RF スパッタ法によってそれぞれ 80~100 nm, 20~30 nm で調製した。この表面をアミノ基修飾したプラズモニクチップに両末端がスクシイミドで修飾された PEG クロスリンカーの片末端を結合し、もう一方にカンジダマンナン捕捉抗体を結合させた。そこへカンジダマンナンを含む唾液検体 (CM を 0.67 ng/ml および 0.33 ng/ml 含有), 検出抗体, Alexa®647 標識二次抗体でサンドイッチイムノアッセイを構築した。正立落射蛍光顕微鏡で x4 の対物レンズと Cy5 蛍光フィルターを用いて蛍光像 (Fig. 1) を撮影し、パターン内外での蛍光強度を評価した。

プラズモニクチップでは、プラズモニクパターン上の蛍光はパターン外の平坦表面と比べて 9.7 ± 2.5 倍の増強が見られた。各唾液検体について 10 回以上の計測の結果、平均値を求めると 0.67 ng/ml の試料では 0.33 ng/ml の試料より大きな蛍光強度が得られた。今後は唾液中の夾雑物による非特異吸着を減らすアッセイや、唾液の前処理について最適化し、より多くの唾液検体の計測を進めていきたい。

謝辞 光硬化性樹脂をご提供頂いた東洋合成工業に感謝申し上げます。

参考文献 1) M. Yako et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **62**, SG1028 (2023).

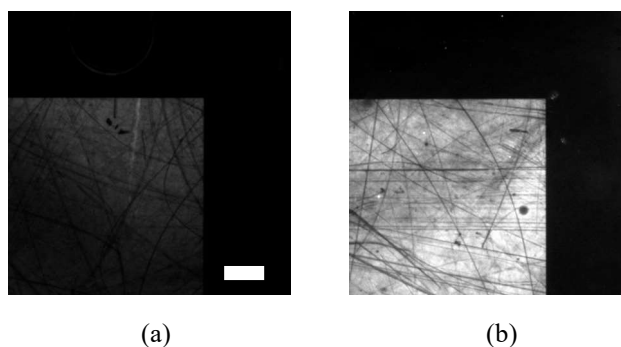


Fig.1 Fluorescence images for saliva samples prepared at CM solutions of (a) 0.33 ng/ml and (b) 0.67 ng/ml. Bar corresponds to 200 μ m.

プラズモニックチップで捕捉された単一エクソソームの 後標識法による蛍光顕微鏡観察

Post-labeling fluorescence microscopy of single exosomes captured by a plasmonic chip

関西学院大 院理工¹, [○]富上 真¹, 名和 靖矩¹, 田和 圭子¹

Kwansei Gakuin Univ.¹, [○]Makoto Tokami¹, Yasunori Nawa¹, and Keiko Tawa¹

E-mail: ktawa@kwansei.ac.jp

エクソソーム (Extracellular Vesicles: Evs) は mRNA や DNA、CD9 などの膜タンパク質を含む直径 100 nm 程の細胞外小胞体で、細胞間のコミュニケーションツールとして体液中に広く存在する。細胞から放出された Ev は、細胞の種類や環境によって組成が変化するため、病状の診断や予測に利用できる。より精度の高い診断を行うために単一 Ev を検出する必要があるが、 ϕ 100 nm の Ev を通常の光学顕微鏡で観察することは困難である。そこで当研究室では、蛍光増強効果を持つプラズモニックチップを用いて、単一 Ev を輝点として観察してきた。先行研究では、蛍光標識抗体を結合した Ev (先標識法) をプラズモニックチップ上の捕捉界面で捕捉し、それを輝点として定量的に評価することを行ってきた。本研究では、単一 Ev のその場診断を目指して、Ev を捕捉界面で捕捉した後、蛍光標識抗体でキャップする後標識法を用いて、定量評価を行った。

プラズモニックチップは、ピッチ 480nm で直径 20 μ m の同心円構造 (Bull's eye) パターンがアレイ化した構造で、銀薄膜が膜厚 40 nm で成膜された。この表面にポリドーパミン膜を調製し、Protein G (5.0×10^{-6} M, 10 μ L)、Anti-CD63 抗体 (3.33×10^{-7} M, 10 μ L) を加え Ev 捕捉界面を調製した。そこに、ブロッキング剤のウシ血清アルブミン、Ev、Allophycocyan (APC) 標識-Anti-CD9 抗体 (3.5×10^{-8} M, 10 μ L) を順に加えてアッセイを構築した。顕微鏡観察では、水銀ランプと EM-CCD カメラを搭載した正倒立蛍光顕微鏡を用い、光照射 (励起) に 40 \times (倒立側)、発光検出に 100 \times (正立側) の対物レンズを、正倒立両側に Cy5 フィルターユニットを用いて透過法で蛍光輝点の観察を行った。

Fig.1 に Ev を含まない参照溶液 (a) と 1400 fM に調製された Ev 溶液 (b) における蛍光像を示す。1400fM の Ev 溶液においては、参照溶液と比べ多数の輝点が確認された。事前に、同条件の顕微鏡観察

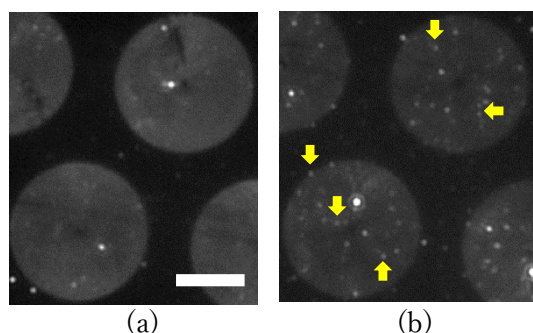


Fig. 1 Fluorescence images for Ev solutions prepared at (a) 0 fM and (b) 1400 fM. Scale bar corresponds to 10 μ m. Yellow arrows show bright spots assigned to single Evs.

で回折限界以下の単一ナノ粒子の輝点の平均半値幅 (FWHM) を 521 nm と評価したので、本実験で得られた輝点のうち、閾値 521 nm 以下を単一 Ev に帰属し、蛍光標識抗体の凝集体等と区別した。Bull's eye パターン 2 個あたり閾値以下の Ev に帰属された輝点は参照溶液では 0 個であったが、1400 fM の溶液では 5 個であることが確認できた。

謝辞 光硬化性樹脂を提供下さった東洋合成工業に感謝します。

Graphene Surface Acoustic Wave Gas Sensor for Effective Detection of Acetone down to Ppt Levels in the Air Atmosphere

Univ. of Tokyo¹, °(D)Haolong Zhou¹, Sankar Ganesh Ramaraj¹, Hiroyasu Yamahara¹, Hitoshi Tabata¹

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

With the advent of modern urbanization, humanity has grappled with numerous health and environmental challenges, leading to a gradual reduction in human lifespan [1–2]. In order to enhance human longevity and well-being, there is a pressing need for a real-time health monitoring device. The surface acoustic wave (SAW) sensor has garnered considerable attention due to its superior thermal stability, lower phase noise compared to crystal resonators, exceptional quality, and temperature characteristics [3]. The SAW resonator operates based on surface phenomena, and any disturbance on the surface of the sensing layer (such as mass load, electrical load, elastic load) can significantly affect the propagation of sound waves, leading to changes in frequency, phase, and amplitude. Therefore, SAW sensors are exceedingly attractive for gas sensing applications.

In this study, we have successfully fabricated monolayer graphene surface acoustic wave gas sensors (G-SAW) utilizing love mode waves for the efficient detection of acetone gas molecules at parts per trillion (ppt) levels at room temperature.

Fig.1(a) illustrates the schematic image of the G-SAW sensor featuring a 3 μm SiO₂ guiding layer. Additionally, Fig. 1(b) showcases the 3D-printed gas chamber utilized for gas sensing analysis, along with a printed circuit board (PCB) for measurement. The G-SAW sensor demonstrates exceptional sensitivity over a wide concentration range of acetone gas molecules (800 ppt - 100 ppm) in atmospheric conditions, as depicted in Fig. 1(c). Furthermore, Fig.1(d) exhibits the frequency shift curves of the G-SAW sensor towards varying concentrations of acetone gas molecules, displaying a linear relationship within the range of 800 ppt to 100 ppm. The G-SAW sensor exhibits exceptional sensitivity towards acetone gas molecules characterized by a high dipole moment (2.88D). This attribute induces a stronger electrostatic interaction with graphene, resulting in deformation and enhanced surface hardness. These results indicate that the elastic effect plays a major role in the high sensitivity of acetone gas molecules. This study offers a promising approach for diagnosing stages of diabetes within the human body.

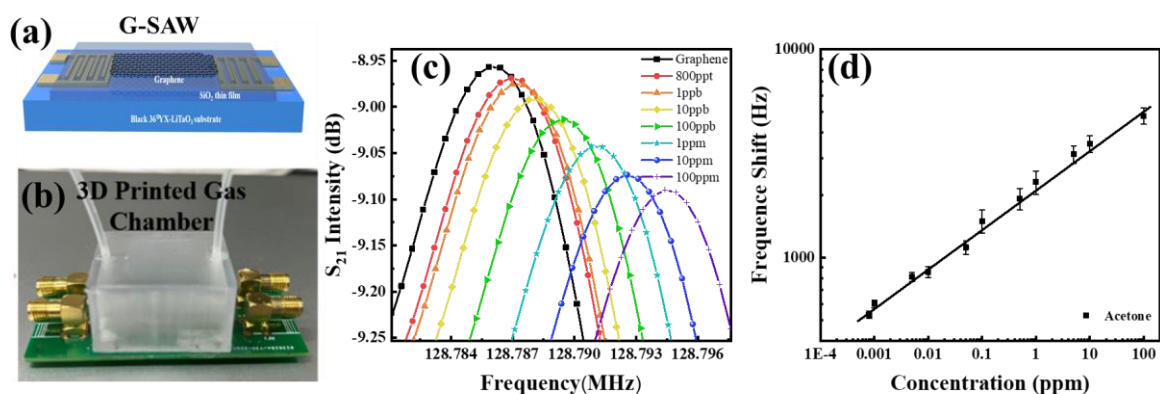


Fig.1 (a) Schematic diagram of SAW sensor with graphene. (b) 3D printed gas chamber with G-SAW device. (c) and (d) Gas sensing analysis of G-SAW sensor for acetone molecules

Acknowledgements: This research was supported by Institute for AI and Beyond for the University of Tokyo, JST, CREST Grant Number JPMJCR22O2, Japan, AMED under Grant Number JP22zf0127006, JSPS KAKENHI Grant Number JP20H05651, JP22K18804, JP23H04099.

Reference: [1] R.A. Potyrailo, et al., *Chem Rev.* 116 (2016) 11877–11923. [2] Z. Lou et al. *Mater. Sci. Eng. R Rep.* 140 (2020) 100523. [3] S. Sridevi. *Sens Actuators B Chem.* 223 (2016) 481–486.

アミンやアンモニウム塩で構成される味覚センサ正荷電脂質膜の電気特性

Electrical properties of taste sensor with positively charged lipid membranes

composed of amines and ammonium salts

九大シス情¹, 九大五感応用デバイス研究開発センター², (株)インテリジェントセンサーテクノロジー³

○渡邊 健太郎¹, 渡辺 竜吉¹, 木村 俊輔², 池崎 秀和³, 都甲 潔²

Grad. Sch. ISEE, Kyushu Univ.¹, R&D Five-Sense Devices, Kyushu Univ², Intelligent Sensor Technology, Inc.³

○Kentaro Watanabe¹, Tatsukichi Watanabe¹, Shunsuke Kimura², Hidekazu Ikezaki³, Kiyoshi Toko²

E-mail: watanabe.kentaro.193@s.kyushu-u.ac.jp

食品の味を数値化する手法として味覚センサが利活用されている。味覚センサの受容部には各味質に選択的な応答を示す脂質高分子膜が用いられており、呈味物質との静電相互作用及び疎水性相互作用による膜電位変化として出力する[1]。その際、野菜等に含まれる無味のNO₃⁻イオン等のアニオン種への応答の抑制は重要であるが、これを実現するための体系的な電気化学的な研究はなされていなかった。

そこで本研究では、正荷電材料として荷電状態や疎水性が異なる、種々のアミンやアンモニウム塩を用いたセンサ膜を作製し、異なるアニオンを含む溶液における膜の電位変化特性を調査した。正荷電材料を、可塑剤としての dioctyl phenylphosphonate (DOPP)、支持材としての polyvinyl chloride (PVC) と共に混合することで脂質高分子膜を製膜し、センサ電極を構築した。センサ電極を異なるアニオンが溶解した水溶液に浸漬し、電位応答特性を調査した。塩化カリウム (30 mM) および酒石酸 (0.3 mM) が溶解した水溶液 (基準液) 中と、サンプル溶液中の電位差を相対値 (relative value) として出力した。

アンモニウム塩である tetradodecylammonium bromide (TDAB) を用いたセンサを、0.1 mM から 1000 mM の濃度のフッ化カリウム (KF) およびヨウ化カリウム (KI) 水溶液に浸漬した際の相対値を Fig. 1 に示す。KI 水溶液における相対値は、いずれの濃度においても KF 水溶液における相対値と比較して負であり、特に 100 mM, 1000 mM の溶液においては 300 mV の差異が生じた。これは、水和エネルギーが小さくストークス半径の小さい I⁻ イオンが、ストークス半径が大きい F⁻ イオンと比較して、TDAB 膜界面に強く静電相互作用するためであると考えられる。同様に, oleylamine (OAm) を用いたセンサを、KF 水溶液および KI 水溶液に浸漬した際の相対値を Fig. 2 に示す。TDAB を用いたセンサの場合と同様に、KI 水溶液における相対値は、KF 水溶液における相対値と比較していずれの濃度においても負であったが、この差は最大で 130 mV であり、TDAB を用いたセンサのように顕著な差異は生じなかった。したがって OAm 膜センサと I⁻ イオン間の静電相互作用は F⁻ イオンとの間に生じる静電相互作用に近く、すなわち OAm 膜のイオン選択性は低いといえる。これは OAm 膜の膜界面の荷電状態や水和状態に起因すると考えられる。以上の結果は、味覚センサによるアニオン種の識別可能性を示唆し、無味の妨害イオン存在下においても味を正確に評価する新規味覚センサの設計において重要な知見である。

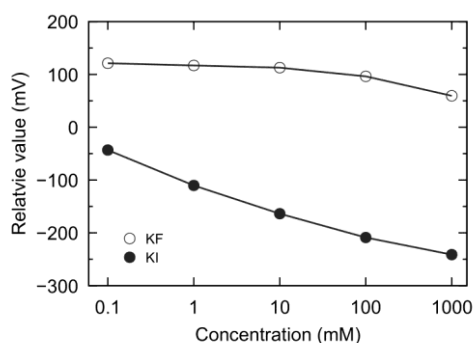


Fig. 1 Relative values of the sensor containing TDAB in KF and KI solutions.

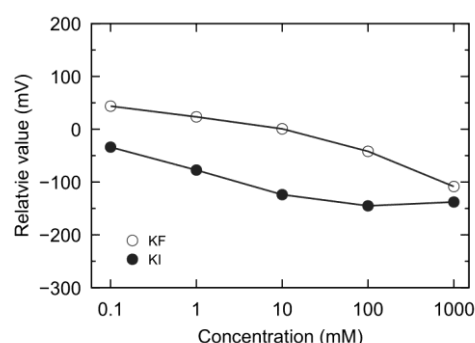


Fig. 2 Relative values of the sensor containing OAm in KF and KI solutions

本研究は JSPS 科研費 21H05006 の助成を受けたものです。

[1] Y. Tahara and K. Toko, Electric Tongues-A, Review, IEEE Sens. J, 13(8), 3001-3011, 2013

The utilization of piezo-impedance properties of porous MWCNTs-PDMS nanocomposite for remote sensing via wireless power transmission technology

Saman Azhari¹, Kouki Kimizuka², Gábor Méhes¹, Yuki Usami², Yasuhiko Hayashi³, Hirofumi Tanaka², Takeo Miyake¹

Waseda University (IPS)¹, Kyushu Institute of Technology², Okayama University³

E-mail: saman@aoni.waseda.jp

The applications of wireless power transmission (WPT) technology have been advancing in the last couple of decades. Resonance inductive coupling (RIC) is one of the few approaches to such technology. During the RIC, the transmitter and receiver are tuned to resonate at a particular frequency for maximum power transfer efficiency in a short distance. As a result of the coupling between the transmitter and receiver, a property known as reflected impedance (Z_r) arises that directly influences the current flow in the transmitter circuit. By manipulating the receiver impedance and the resultant Z_r , we are able to monitor the changes in the receiver via the transmitter circuit.

Here we demonstrate a simple approach to monitor and measure the changes in the receiver circuit via the transmitter using a full-bridge rectifier and a resistor-capacitor (RC) filter (Figure 1a). The porous multiwalled carbon nanotubes (MWCNTs)-PDMS nanocomposite fabricated via the sacrificial template technique used in this work demonstrated impedance variation due to applied force (Figure 1b). By parallelly connecting the nanocomposite sensor to the receiver antenna, we manipulate the reflected impedance resulting in changes in the current flow through the transmitter circuit. We were able to successfully monitor the applied force on the sensor remotely (Figure 1c).

Furthermore, we confirmed the stability of piezo-responsive porous MWCNTs-PDMS nanocomposite chemically bonded to the silver electrode using a silane coupling agent with 5.8 % mechanical hysteresis. In addition, we demonstrated the proposed setup's performance with a strain sensitivity of 24.73 and a pressure sensitivity of 0.98. This approach may open a path for disposable medical and other haptic-based applications that do not require complex communication protocols.

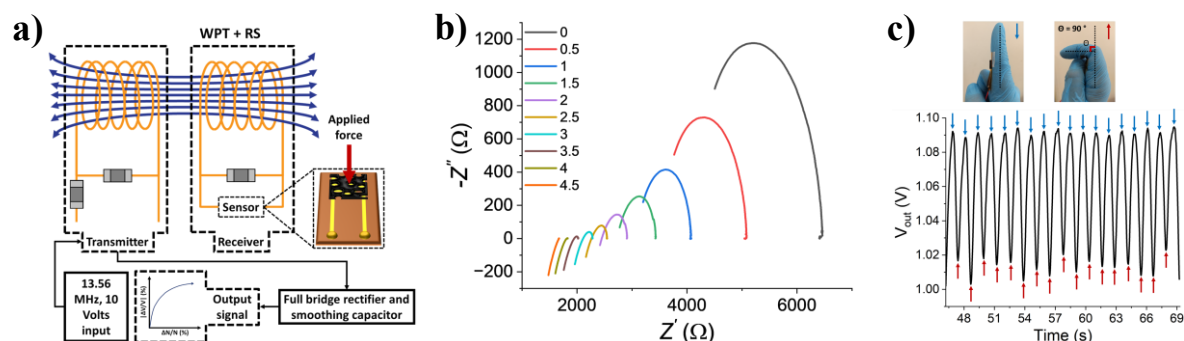


Figure 1. a) The concept figure of the proposed system; b) the Nyquist plot of the sensor corresponding to applied force and c) the output voltage of the proposed system for a 90° pip joint bending.

S. Azhari et al., IEEE Sensors Journal, vol. 23, no. 7, pp. 7902-7909, 1 April 2023, doi: 10.1109/JSEN.2023.3248021.

SATORI 法による臨床現場即時検査の実現に向けて

Toward point-of-care testing with SATORI

理化学研究所 開拓研究本部, °飯田 龍也, 安藤 潤, 篠田 肇, 渡邊 力也

RIKEN CPR, °Tatsuya Iida, Jun Ando, Hajime Shinoda, Rikiya Watanabe

E-mail: tatsuya.iida.yf@riken.jp

新型コロナウイルスの世界的大流行を経験し、臨床現場即時検査 (POCT) への関心が高まり、迅速性と感度を両立した次世代の感染症診断法の開発が望まれている。そこで我々は、CRISPR-Cas13a の RNA 検出技術とマイクロチップによる 1 分子デジタル計測技術を融合した SATORI 法を開発してきた。SATORI 法では、検体をマイクロチップ上で数十 μL 以下の微小な試験管に分画して、ウイルス RNA の有無を Cas13a で判別し蛍光シグナルへと変換させ、蛍光を発する微小試験管を数えることでウイルス RNA を増幅させることなく迅速にその個数を定量できる (Fig. 1A)。このとき、Cas13a のガイド RNA の配列設計次第で、種々のウイルスや変異株にも対応できるため、幅広い臨床応用が期待されている。SATORI 法の社会実装を目指すには計測を自動化する必要がある、さらに、POCT への対応には装置の低コスト化・小型化も不可欠である。これまでに、顕微鏡と分注機を連動させた全自動計測装置 (opn-SATORI) の開発に成功しており、新型コロナウイルスのゲノム RNA を用いた検証では抗原検査のような迅速性 (~ 9 min/test) と PCR 検査と同等の感度 (6.5 aM; 3.9 cp/ μL) の両立を達成し、同ウイルス感染症の臨床検体を用いた評価では RT-qPCR・ゲノム解析の検査結果と 98% の一致率で陽性陰性・変異株を判定できることを実証した¹。

本研究では、POCT 対応に向けた顕微鏡代替イメージング装置 (COWFISH) の製作² やその小型化 (COWFISH 2) に取り組んだ (Fig. 1B)。装置の低コスト化・小型化の第一歩として、opn-SATORI 装置の中で最も高価で大型な共焦点顕微鏡を代替できるよう、一眼レフカメラとテレセントリックレンズを組み合わせた安価で小型なイメージング装置 COWFISH を製作した。価格・設置面積はそれぞれ共焦点顕微鏡の 1/30・1/7 に抑えつつ、RNA のデジタル検出では opn-SATORI 装置と同等の性能を維持し、加えて、顕微鏡で約 60 視野に分割する範囲を 1 度に撮像できるため計測時間を大幅に短縮した。COWFISH で実証したコンセプトはそのままに、各構成部品を再選定してカメラやレンズなどを小型なものに置き換え洗練化した COWFISH 2 の製作も進めており、価格・設置面積をそれぞれ 1/45・1/35 にまで削減することに成功した。今後は、COWFISH 2 をイメージングユニット化して分注機へ組み込むことで、安価で小型な全自動計測装置の完成を目指し、SATORI 法による様々なウイルス感染症の POCT 実現に向けた臨床応用に繋げていきたい。

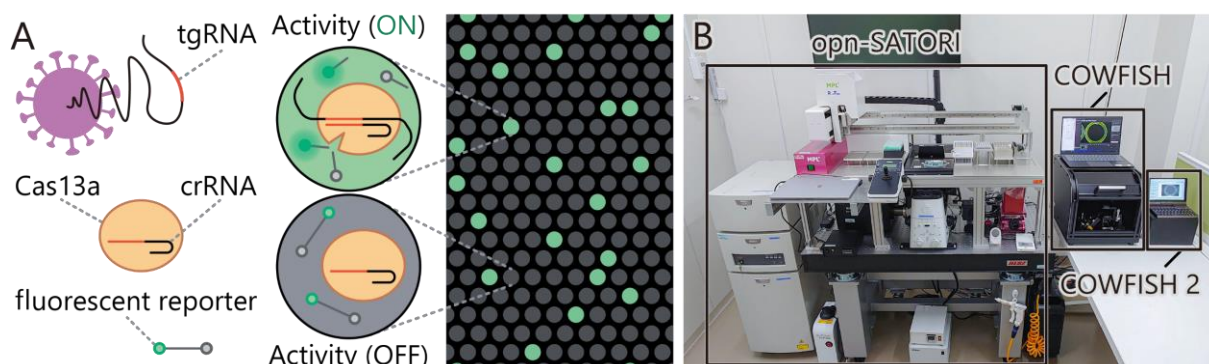


Fig. 1. (A) Schematics of SATORI. (B) Photographs of opn-SATORI, COWFISH and COWFISH 2.

Ref. (1) H. Shinoda, T. Iida, et. al., *Commun. Biol.*, **5**, 473, 2022. (2) T. Iida, J. Ando, et. al., *Lab Chip*, **23**, 684, 2023.

タンパク質インプリントポリマーナノゲルを用いた高感度タンパク質検出

Highly sensitive protein sensing by protein-imprinted polymer nanogels

神戸大院医¹, 神戸大院工², 神戸大産官学連携本部³, 産総研フォトバイオOIL⁴ °砂山 博文¹,
Chehasan Cheubong², 高野 恵里², 竹内 俊文^{3,4}

Grad. Sch. Med., Kobe Univ.¹, Grad. Sch. Eng., Kobe Univ.², Innov. Commercialization Div., Kobe Univ.², AIST-PhotoBioOIL⁴, °Hirobumi Sunayama^{1,2}, Chehasan Cheubong², Eri Takano²,
Toshifumi Takeuchi^{3,4}

E-mail: sunayama@penguin.kobe-u.ac.jp, takeuchi@gold.kobe-u.ac.jp

タンパク質は精緻な分子認識により生体内恒常性の維持が達成されており、この分子認識能を利用した分析技術は医学・工学・農学と広範な分野で用いられている。特に抗体や酵素を利用したバイオセンサは高い親和性・選択性を有していることから汎用されている。バイオテクノロジー技術の発展により多様な標的に対する抗体の獲得技術が確立されているが、依然として抗体や酵素を得るには煩雑な操作が必要であり、試薬・分析機器も高価な傾向がある。これらは簡易・迅速な分析が必要な分野において障壁となっている。我々は比較的安価に大量生産可能な高分子材料に分子認識能を付与することができる、分子インプリンティングに着目し、人工高分子ベースの分子認識材料開発について研究を行ってきた[*Chromatography*, 2016, 37, 43]。本材料は高分子材料作製時に標的分子と相互作用可能な機能性モノマーと標的分子を混入させることで作製される。我々は本手法を独自に発展させ、この機能性モノマーの相互作用部位と重合官能基の間にジスルフィド結合等の修飾可能部位を組込んでおくことで、材料作製後にこの修飾可能部位の反応性を利用して様々な機能を空間選択的に追加するポストインプリンティング修飾法(PIM)を確立した[*Chem. Commun.*, 2018, 54, 6243]。本研究では分子インプリンティングとPIMによるタンパク質蛍光センサを構築し、これを用いて近年イスラム教徒の増加に伴い問題となっている、食料品等に禁忌とされる豚由来成分の混入の検出について検討を行った。

豚由来成分のマーカースとしてブタ血清アルブミン(PSA)を標的に選択した。PIM部位として2級アミノ基、相互作用部位として安息香酸部位を有する機能性モノマー4-[2-(*N*-methacrylamido)ethylaminomethyl] benzoic acid (MABA)を設計・合成し、これとコモノマーと架橋剤を標的分子であるPSA存在下で無乳化剤沈殿重合(70 °C, 12 h)を行うことでポリマーナノゲル粒子を合成した。この粒子をサイズ排除クロマトグラフィーとイオン交換クロマトグラフィーで精製し、約25 nmのナノゲル粒子を得た。この粒子にPIMとして蛍光分子ATTO647N NHSを反応させることで蛍光性のPSAインプリントナノゲル粒子を得た。この粒子のタンパク質認識特性を調べたところPSA濃度に依存した蛍光強度の変化が観察されたことから本ナノゲル粒子がPSAを吸着しその結合を蛍光変化として読み出せることが示唆された。本ナノゲル粒子のセンシング能について選択性及び模擬試料を用いた添加回収実験から検討を行ったので報告する。

色素結合法による人血清アルブミン測定における PEDOT:bromocresol purple 電気化学電極の評価

Evaluation of PEDOT:bromocresol purple electrochemical electrodes for determination of human serum albumin by dye-binding interaction

東京大学¹ ○(P)Alex C. Tseng¹, 坂田 利弥¹

Univ. of Tokyo¹ ○(P)Alex C. Tseng¹, Toshiya Sakata¹

E-mail: sakata@biofet.t.u-tokyo.ac.jp

1. Introduction

Doping of PEDOT (poly(3,4-ethylenedioxythiophene)) with pH indicator dyes provides a simple way to introduce pH sensitivity into electrochemical biosensors. This is because PEDOT can mediate the redox cycling of the conjugated system found in both phthalein and azo dyes (e.g., bromothymol blue and methyl orange) [1]. Bromocresol purple (BCP) is an example of a phthalein dye that finds clinical use for serum albumin assay thanks to specific interactions with hydrophobic pockets in albumin proteins that produce a shift in the local pH around the dye [2]. Accordingly, under buffered conditions this dye-binding interaction is accompanied by a colour change (i.e., metachromasy) that enables facile quantitation by spectrophotometry.

To advance the development of point-of-care biosensors, we investigate whether the electrochemical sensitivity of PEDOT electrodes can be applied in conjunction with established dye-binding assay for human serum albumin (HSA). Such an approach would obviate the need for a spectrometer and optical routing, thus facilitating device miniaturization and ease of use. Moreover, fabrication via electro-polymerization affords high spatial resolution which can then be leveraged to develop arrayed electrodes with differential specificity, for instance, to quantify the modification degree of HSA (e.g., glycation) for more targeted assay in the future.

2. Experimental Methods

Electrochemical electrodes were prepared on Au rods (ϕ 3 mm; BAS Inc.) by galvanostatic deposition for 375 s at 0.10 mA/cm² (Keysight B1500A) with stirring from a polymerization solution containing 7 mM EDOT, 1 mM BCP (Fujifilm Wako), and 5 to 50 mM poly(styrene sulfonate) sodium salt (NaPSS; Alfa Aesar) in 0.1 M HClO₄ made up in de-ionized (DI) water. Prior to use, this solution was stirred and sparged with N₂ for 30 min to ensure complete dissolution of constituents and removal of O₂. The Au surface was prepared by alumina polishing (0.05 μ m) and sonication in DI water for 1 min. All electrochemical measurements were taken vs. Ag/AgCl in saturated KCl and a Pt counter electrode using either ALS 618E or B1500A.

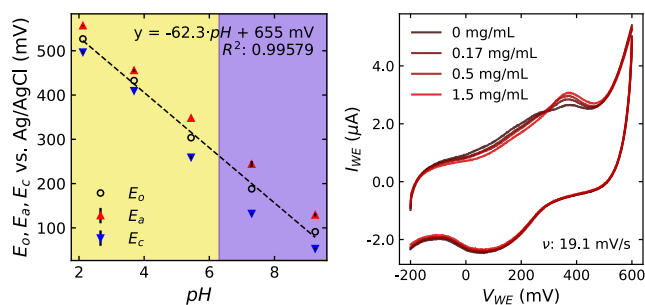


Fig. 1: (a) pH response of PEDOT:PSS:BCP extracted from redox peak potentials observed during CV at 20 mV/s in Britton-Robinson buffer, adjusted to 0.2 M ionic strength (N=3). Colour change from yellow to purple occurs at a pH near BCP pK_a of 6.3. (b) Cyclic voltammograms of separate electrodes in protein-free 1x PBS after 20 min incubation in HSA solutions of indicated concentration in 1x PBS.

3. Results

Incorporation of BCP into PEDOT:PSS was confirmed by observing the pH response of BCP redox couple during cyclic voltammetry (CV), see Fig. 1a, with Nernstian sensitivity of 62 mV/pH, expected for a 2e⁻/2H⁺ process [1] and peak separation increasing from 60 to 100 mV from low to physiological pH. For dye-binding, electrodes were incubated in HSA solutions in 1x phosphate buffered saline (PBS) for 20 min in ambient. Subsequently, CV in protein-free 1x PBS revealed changes in the oxidation wave with incubated HSA concentration (Fig.1b), with intermediate peaks shifting to anodic potentials (0.37 V) expected for BCP in low pH. Remarkably, this suggests that local pH shifts within the HSA-BCP complex behave expectedly, yet remain electrochemically accessible to the PEDOT electrode, which is promising for further development.

References:

- [1] F. Mariani *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 10, no. 26, pp. 22474–22484, Jul. 2018.
- [2] S. Ito *et al.*, *Clinica Chimica Acta*, vol. 411, no. 3, pp. 294–295, Feb. 2010.

ガス透過膜で被覆したグラフェンバイオセンサー

Graphene Biosensor Coated with a Gas-Permeable Membrane

阪大産研¹, 阪大 OTRI², 村田製作所³, 香川大医⁴, 京府医大院医⁵,
 静岡県大薬⁶, 阪大 CSRN⁷, 東北大 SRIS⁸



○小野 堯生¹, 甘中 美帆¹, 金井 康^{1,2}, 宮川 成人³, 品川 歩³, 中北 慎一⁴, 渡邊 洋平⁵,
 牛場 翔太³, 谷 晋輔³, 鈴木 康夫⁶, 木村 雅彦³, 千葉 大地^{1,2,7,8}, 松本 和彦¹

SANKEN, Osaka Univ.¹, OTRI, Osaka Univ.², Murata Manufacturing Co., Ltd.³, Kagawa Univ.⁴,
 Kyoto Pref. Univ. Med.⁵, Univ. Shizuoka⁶, CSRN, Osaka Univ.⁷, SRIS, Tohoku Univ.⁸

○Takao Ono¹, Miho Kannaka¹, Yasushi Kanai^{1,2}, Naruto Miyakawa³, Ayumi Shinagawa³,
 Shin-ichi Nakakita⁴, Yohei Watanabe⁵, Shota Ushiba³, Shinsuke Tani³, Yasuo Suzuki⁶,
 Masahiko Kimura³, Daichi Chiba^{1,2,7,8}, and Kazuhiko Matsumoto¹

E-mail: t-ono@sanken.osaka-u.ac.jp

炭素の単原子層薄膜であるグラフェンは、高比表面積かつ高移動度のため、極めて表面敏感であり、標的の接触を電氣的に高感度検出するバイオセンサーに最適の材料である。しかし、グラフェンの高感度特性は、たんぱく質などの夾雑物に対する脆弱性と表裏一体であり、標的への応答性を維持しつつ、夾雑物への応答を抑制しなければならないジレンマがある。

本研究では、水を通さず、かつガス透過性の高い poly(dimethylsiloxane) (PDMS)膜でグラフェンバイオセンサーを被覆した[1,2]。標的であるガス分子のみがグラフェン表面に到達する(Fig. 1)。これにより、溶液中の標的である NH₃ ガスへの応答性は維持された一方、夾雑物であるウシ血清アルブミン(BSA)への応答は約 1/1000 に抑制された(Fig. 2)。実質的に NH₃ のみが寄与する本センサーの応答は、溶液中の NH₃ 生成反応と、NH₃(ドナー)の吸脱着に伴うグラフェンの抵抗率変化によってモデル化できる。我々は先に、グラフェンでの酵素反応計測による細菌の高感度検出法を提案してきた[3,4]。こうした酵素反応計測を本法と組み合わせることで、モデルに従って安定かつ高感度に動作する、実用的なグラフェンバイオセンサーを実現できる。

【謝辞】本研究は JST さきがけ(JPMJPR19G3)、未来社会創造事業(JPMJMI19D4)の支援を受けた。

[1] T. Ono *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* published online (2023). DOI: 10.35848/1347-4065/acda00

[2] 特願 2023-087903. [3] T. Ono *et al.*, *Nano Lett.* **19**, 4004-4009 (2019). [4] 特許第 6949397 号.

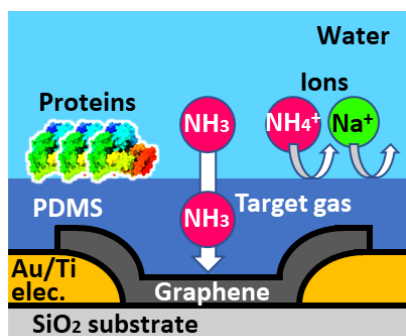


Fig. 1: Schematic image of the biosensor.

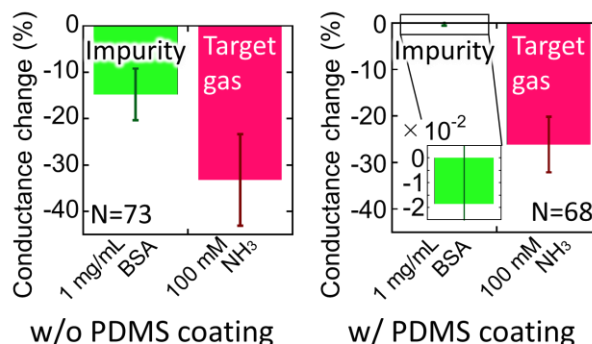


Fig. 2: Selective response by PDMS coating.

グルコース変動と心拍変動の時系列相関分析による就寝中の自律神経活動の可視化
 Visualization of autonomic nervous system activity during sleep by time-series
 correlation analysis of glucose fluctuation and heart rate variability

東洋大¹, 獺白寿生科学研究所² °加治佐 平¹, 黒井 俊哉², 原 浩之²

Toyo Univ.¹, Hakuju Institute for Health Science Co., Ltd.², °Taira Kajisa¹, Toshiya Kuroi²

E-mail: kajisa@toyo.jp

【緒言】日々の睡眠は、健康を維持するためには必要であり、睡眠の質の低下は、睡眠障害から精神疾患、さらには糖尿病、心筋梗塞、脳卒中などの生活習慣病リスクが高まる可能性が示唆されている。その中でも、精神疾患の初期症状は、睡眠の質の低下からくることも示唆されており、実際に米国成人の3分の1が睡眠時間を7時間未満と回答し、5,000~7,000万人が睡眠障害を抱えているという報告もある。また、日中のストレスが睡眠の質に影響を与えるという報告や、PCやスマートフォンデバイスの使用が睡眠の質に与える影響について調査・研究した報告も多くある。以上のことから、日々の睡眠の質についてモニタリングし、正しく評価し、解析することは重要である。そこで、体内のグルコース上昇/下降は、糖質の経口摂取によるものの他に、ストレスホルモンによる肝グリコーゲンの分解(Glycogenolysis)によっても引き起こされるメカニズムに着目した。本研究においては、グルコース変動と心拍変動の時系列データを相互相関分析することで、自律神経活動をグルコース変動で評価する可能性について検討する。

【実験方法】20~40代の成人(男性2名、女性3名)の健常者を被験者として、経口摂取および運動による影響の少ない就寝中における、持続的グルコースモニタリング装置(CGM)を用いたグルコース変動と、心電計(Electrocardiograph, ECG)を用いた心拍変動(HRV)について、時系列データとして取得し、それぞれ時間ラグを考慮した相互相関分析を行った。

【結果および考察】

健常者5名(n=25)の就寝中のHRVとグルコース変動の時系列データを取得し、お互いのデータについて、相互相関分析を行った結果、ストレス状態を示すHRVの周期と、グルコース変動は、相関係数 $r=-0.45$ と、中程度の負の相関を示すことが明らかとなった。また、HRVとグルコース変動の時間ラグは、<20分程度であった。このことから、自律神経活動に関わるストレス状態をグルコース変動で評価できる可能性が示唆された。講演では、睡眠工学的な議論から、さまざまなアスリートが緊張・興奮状態で示すグルコースデータについて述べる。

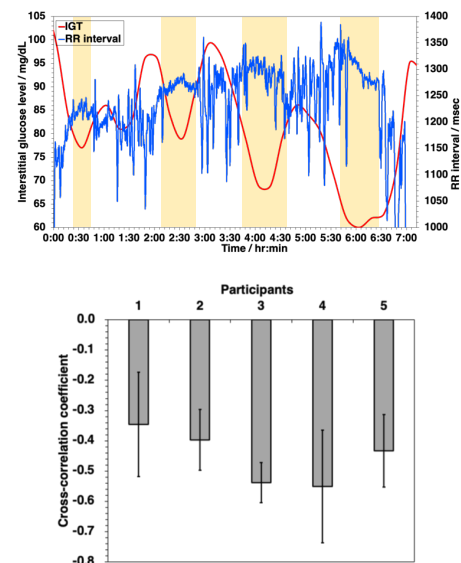


図 1: 就寝中の HRV とグルコースの時系列データ(上), 被験者の HRV とグルコースの相関係数(下)

スマートフォンと無線給電を用いた 完全ワイヤレス電気化学発光バイオセンサー

Fully wireless electrochemiluminescent biosensor using a smartphone
and wireless power supply

産総研フォトバイオ OIL¹, 阪大産研², 民谷栄一^{1,2} (P)大崎脩仁¹ 永井秀典¹

AIST PhotoBio OIL¹, Osaka Univ. SANKEN², Eiichi Tamiya^{1,2}, Shuto Osaki¹,

Hidenori Nagai¹

E-mail: tamiya@ap.eng.osaka-u.ac.jp

ワイヤレス電源と電気化学バイオセンサーを連携させることで、エネルギー供給とセンサーの応答取得を完全ワイヤレスで行うことができ、IoT ツールとしてのバイオセンサーを実現することができる。電磁誘導法では、電力を受ける電極チップに IC を搭載せず、単純な電位変調回路（量産型の安価な IoT センサーを想定）で電気化学発光を誘導する基本条件を検討した。特に、送電の伝送周波数に共振する容量成分や整流ダイオードを用いた回路で得られる電位波形を用いて、電極に電気化学発光反応が誘導されるかどうかを検討した。誘導電圧波形に対応した電気化学発光が得られ、電位誘導の最適条件が明らかになった。電磁誘導により電極チップに発生した発光を無線で検出するためには、スマートフォンに内蔵された高感度 CMOS カメラを活用することができ、特に市販の高感度かつ ISO : 51200 で 1000 万画素以上の高解像度を持つスマートフォン端末を用いて評価した。得られた画像は、画像解析ソフトを用いて定量的に評価（感度、測定範囲など）することができた。量産可能で安価な印刷電極にグルコースオキシダーゼや乳酸オキシダーゼなどの酸化酵素とルミノールを配置し、試験液を導入すると、酵素が電極上で反応し生成した過酸化水素とルミノールが発光する。このように、スマートフォンからのワイヤレス給電で電極チップに電気化学発光を起こさせ、スマートフォンのカメラで撮影した画像を診断する完全ワイヤレスバイオセンサーを開発できた。