

CMOS カメラによる電気複屈折イメージング — 透明光学材料の強誘電ドメインを可視化する —

1. 発表者：

上村 洋平（東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 博士課程 3 年生）
松岡 悟志（東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 助教）
荒井 俊人（東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 講師）
長谷川 達生（東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 教授）

2. 発表のポイント：

- ◆透明な強誘電体中の分極ドメインを、CMOS カメラを用いた高速・一括イメージングにより可視化
- ◆電界印加により生じる僅かな屈折率変化を、偏光位相差をもとに超高感度に 2 次元マッピング
- ◆透明光学材料への適用を可能にする変調イメージング技術の新たなラインナップ

3. 発表概要：

東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 博士課程 3 年生の上村 洋平 大学院生、松岡 悟志 助教、荒井 俊人 講師、長谷川 達生 教授と国立研究開発法人 産業技術総合研究所の共同研究グループは、高性能 CMOS カメラ（注 1）を用いて、透明物質中で自発分極が揃った強誘電ドメイン（注 2）の分布の様子を可視化できる、新たな変調イメージング技術を開発しました。

露光した光の像を瞬時に電気信号に変換する半導体デバイスである CMOS カメラ（イメージセンサ）は、近年著しい進化と普及が進んでおり、現在、その優れた機能をさらに活用する手法の開発が求められています。なかでも「変調イメージング（注 3）」は、撮像対象に（電界などの）外場を加えたときに像に生じるごく僅かな変化を、超高感度な一括計測により捉えることで、通常の光学像の撮影ではまったく識別し得ない像を浮かび上がらせることが可能な技術です。ただ従来法は、撮像する対象の可視光域の吸収が外場によって変化を示すものに限られていました。本研究では、電場によって生じる屈折率のごく僅かな変化を、電気複屈折効果（ポッケルス効果）（注 4）にもとづく透過光の偏光位相差を通して捉えることにより、透明な光学材料にも適用できる技術を開発しました。本手法を用いて、実際に透明な強誘電体（注 5）の一種である水素結合型有機強誘電体（注 6）薄膜内の強誘電ドメインの可視化に成功しました。

本研究成果は、米国科学誌 *Physical Review Applied* に 2020 年 8 月 21 日（米国東部時間）掲載されます。本研究は、JST 戦略的創造研究推進事業 CREST（JPMJCR18J2）、JSPS 科研費基盤研究 B（19H02587）、JSPS 科研費基盤研究 B（19H02579）、JSPS 科研費特別研究員奨励費（18J22030）による支援を受けて行われました。

4. 発表内容：

① 研究の背景

撮像機能を持つ固体半導体デバイスであるイメージセンサは、近年、スマートフォン等の多くの身近な電子製品に主要部品として組み込まれ、幅広く普及するに至っています。代表的な

CMOS イメージセンサは、受光素子であるフォトダイオードと増幅素子である CMOS トランジスタの対が 2 次元的に配列した構造からなり、露光した光学像を、高速・高感度に電気信号に変換できます。イメージセンサは、基本的には人間の目で見たものと同等の光による像をディスプレイ上に画像として再現するデバイスですが、例えば赤外光を計測することで、人間の目に見えない像を浮かび上がらせることができます。「変調イメージング」は、撮像対象に（電界などの）外場を加えたときに像に生じるごく僅かな変化（差分イメージ）を超高感度に捉えることにより、通常の像の撮影では全く見えない像を可視化できるイメージング技術です。特に高性能なイメージセンサを用いれば、各画素の光量変化が 0.01% に満たないごく僅かな像の変化を捉えることもできます。これまでに、薄膜トランジスタ（TFT）を撮像対象としてチャンネル内のキャリア分布の可視化に成功し、また強誘電体物質を対象として強誘電ドメインを可視化するなど、電子デバイスや物質内のミクロな電子状態をマッピングする手法として有用なことが明らかになっています。ただこれまでは、撮像する対象が可視光域に吸収を示し、かつ外場による吸収変化を示すものに限られていたため、透明物質を含む幅広い材料に適用できないことが課題となっていました。

② 研究の経緯

東京大学と産総研の共同研究グループは、CCD や CMOS 等のイメージセンサの優れた撮像機能を、物質中のミクロな挙動を観測するための先進的な評価技術として活用する研究開発に取り組んでいます。これまでに、有機 TFT にゲート電圧を印加しチャンネル内にキャリアを蓄積した際に半導体層の光吸収率が僅かに変化する現象を用いて、TFT の駆動状態を可視化する「ゲート変調イメージング法」を開発しました[1, 2]。これにより、膨大な数の有機 TFT からなる TFT アレイの駆動状態を光学イメージ化し、非破壊一括検査できることを示しました[3]。また強誘電体に電界を印加した際に生じる吸収率の変化が、自発分極の向きにより異なる現象を用いることで、物質中の強誘電ドメインを高速・大面積・非接触に可視化する「強誘電体電界変調イメージング（FFMI; Ferroelectric Field Modulation Imaging）（注7）」を開発しました[4]。今回、透明な物質を撮像対象とするため、電界印加により屈折率に変化が生じる「電気複屈折（ポッケルス）効果」に着目しました。特に、屈折率変化を透過光の偏光の位相差として高感度に捉えることにより、透明な強誘電体薄膜中の分極ドメインを、高速・一括イメージングにより可視化できることを見出しました。複屈折による偏光位相差のスペクトル解析、及び電気複屈折イメージングの波長依存性と画像データ解析をもとに今回の成果が得られました。

③ 研究内容

今回開発した複屈折 FFMI 法の模式図を図 1 に示します。撮像対象の薄膜試料に直線偏光を入射し、試料に電界を印加しながら透過光を CMOS カメラで撮影します。強誘電体は光学異方性を持つため、光学主軸に対して傾いた直線偏光を入射すると、各光学主軸に偏光した成分に対して異なる位相遅れを生じるため、透過光は楕円偏光となります。試料に電界を印加すると、ポッケルス効果により屈折率が異方性を含めて僅かに変化し、透過光の楕円偏光の状態も僅かに変化します。透明物質のため試料からの透過光強度の総和には変化はありませんが、偏光板を通すと、透過光の楕円偏光度の変化を光強度の変化として検出することができます。物質中で強誘電ドメインの自発分極の向きが異なる場合には、電界印加により変化する屈折率も自発分極の向きに応じて異なるため、異なる強誘電ドメインが分布する様子を、撮影する像の明暗の差として捉えることができます。電界印加による像の変化を繰り返し撮影し、その変化分を差分画像として抽出することで、像のわずかな変化を高感度に検出することができます。

以上の手法を透明な水素結合型有機強誘電体薄膜に適用し、強誘電ドメインの観測を試みしました。有機分子が水素結合でつながった水素結合型有機強誘電体は、非常に大きな自発分極に由来した優れた強誘電性を示します。ここでは、溶液塗布プロセスを用いて作製した2-メチルベンゾイミダゾール (MBI) 単結晶薄膜を測定に用いました。図1右下は複屈折FFMI法により透明 MBI 薄膜の偏光状態を2次元マッピング測定した結果を示します。自発分極の向きが異なる領域が、撮影する像の明暗 (図中の赤と青) の差として明瞭に捉えられており、これよりストライプ状の強誘電ドメインが隣接していることが分かります。またこの結果は、圧電応答力顕微鏡 (PFM) (注8) で測定した結果と一致することが確認されました。

図2aに MBI 薄膜の吸収スペクトルを示します。可視光領域 (400–800 nm) には、いずれの光学主軸方向にも光の吸収が見られないことが確認されました。光学主軸に対し45度傾いた直線偏光を入射し、偏光子を通して透過光強度を測定すると、図2bに示すように吸収のない可視光領域で光強度が波長とともに大きく増減する様子が見られました。これは、薄膜内で各光学主軸の偏光成分の位相速度が異なるため、透過光が楕円偏光となり、波長とともにその楕円偏光率が大きく変化するため見られたものと考えられます (図2b 模式図)。ただこれだけでは、自発分極の向きが180度異なる強誘電ドメインを見分けることはできません。

可視光領域の各波長の光を用いて複屈折FFMI測定を行ったところ、FFMI信号の符号に、波長とともに大きく変化する様子が見られました (図3)。電界変調スペクトル (図3b 実線) ・理論シミュレーション (図3b 点線) との比較から、これらのFFMI信号が、電圧印加により生じる僅かな屈折率変化を偏光位相差を通して超高感度に捉えたものであることが確認されました。特にこれにより、自発分極の向きが180度異なる強誘電ドメインを見分けることができました。またFFMI信号がこのように波長に依存して符号が大きく変化する理由は、透明 MBI 薄膜の屈折率が各光学主軸で大きく異なる (~0.4) ため、平面状の分子が積層して形成された有機材料に特有な性質に由来しています。

今回用いた薄膜試料では、電界印加により得られる透過光強度の変化率は僅か0.1%以下に過ぎませんが、高性能 CMOS カメラを用いて、電界印加により生じる光学像の微小変化を差分画像として超高感度に抽出する変調イメージング技術を用いれば、わずか数分でドメインを可視化することができます。またこの手法では、信号強度が試料の厚みだけでなく、厚さ方向の強誘電ドメインの分布を反映することから、その解析をもとに3次元的なドメイン構造を捉えられることも確認されました。

【今後の予定】

これまで変調イメージングの撮像対象は、可視光を吸収し外場により吸収強度が変化する物質に限られていましたが、本研究により、透明物質を含む幅広い材料に適用できるようになりました。今後は、本手法を各種の光学デバイスや多彩なフェロイック物質など、興味あるデバイス・物質群に適用する試みを進めていきます。また CMOS カメラの新たな活用法として、材料・デバイス評価技術に限らない幅広い社会課題に適用する取り組みを進めていきます。

5. 発表雑誌:

雑誌名: *Physical Review Applied* (オンライン版: 8月21日)

論文タイトル: *Birefringent Field-Modulation Imaging of Transparent Ferroelectrics*

著者: Yohei Uemura*, Satoshi Matsuoka, Jun'ya Tsutsumi, Sachio Horiuchi, Shunto Arai, Tatsuo Hasegawa

DOI 番号: 10.1103/PhysRevApplied.14.024060

アブストラクト URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevApplied.14.024060>

6. 問い合わせ先 :

東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻
大学院生 上村 洋平 (うえむら ようへい)
〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1 工学部 6 号館

東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻
教授 長谷川 達生 (はせがわ たつお)
〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1 工学部 6 号館

7. 用語解説 :

(注1) CMOS カメラ

CMOS は相補型金属酸化膜半導体 (Complementary metal-oxide semiconductor) の略。CMOS カメラは受光部に配列した各撮像素子で光信号を電圧に変換して読み出すことで光学像を撮影する。CCD (Charge Coupled Device) カメラに比べて高速な信号読み出しが可能という特徴がある。

(注2) 強誘電ドメイン

強誘電体の内部で、自発分極の方向が揃った領域のこと。通常、強誘電体は分極方向が異なる複数の強誘電ドメインで構成されており、ドメインが接する境界面は特に強誘電ドメイン壁と呼ばれる。外部電界を印加すると、電界に近い方向の自発分極をもつドメインが拡大し、電界と逆向きの自発分極をもつドメインは縮小する。すなわち、電界によってドメイン壁が移動することで結晶全体の分極が変化する。ドメイン壁の運動速度や安定性は強誘電体デバイスの応答速度や保持特性を支配する重要な要素である。

(注3) 変調イメージング

CMOS カメラなどのイメージセンサを用いて、電圧印加による光学イメージの微小変化を捉える技術。薄膜トランジスタ (TFT) アレイの動作を高速・大面積に評価可能なゲート変調イメージング技術として大きく発展した。

(注4) 電気複屈折効果 (ポッケルス効果)

複屈折とは、屈折率に異方性を持つ物質に光が入射したとき、偏光方向が異なる2つの光線に分かれる現象。2つの光線についての屈折率はそれぞれ異なり、物質を透過後は光電場の振動に位相差が生じる。そのため、直線偏光を複屈折性の固体に対して垂直に入射すると、透過光は一般に楕円偏光になる。電気複屈折効果は電界印加により物質の複屈折が変化する現象。複屈折の変化に伴い、透過する楕円偏光の形状が変化する。強誘電体の場合、複屈折の増減や変化率が自発分極と外部電界の相対方向に依存する。

(注5) 強誘電体

強誘電体は絶縁体の一種であり、通常の絶縁体とは異なり外部電界がない状態でも電気分極を保持する性質をもつ。さらに電界を印加することで電気分極の方向を変えることができる。自発的に保持されている電気分極は自発分極と呼ばれ、応力や温度変化で大きさが変化するため、圧力センサや赤外線センサなどに利用されている。また、自発分極の保持および電界による反転を利用して情報を保存および書き換え可能なメモリ素子に応用されている。

(注6) 水素結合型有機強誘電体

炭素原子、窒素原子や水素原子からなる有機分子で構成される強誘電体。低分子どうしが水素結合で繋がり、水素結合中の水素原子が秩序を形成することで反転対称性が破れて自発分極をもつ。また、水素原子が集団運動することで自発分極が反転する。室温で非常に大きな自発分極を有する強誘電性を示す物質が相次いで発見され、注目されている。

(注7) 強誘電体電界変調イメージング (FFMI; Ferroelectric Field Modulation Imaging)

強誘電ドメインを可視化する光学手法の一種。電界印加による光学定数の微小変化によって、自発分極の向きが異なる強誘電ドメインを透過する光強度に生じる差を測定する。交流電圧と同期して正電圧状態と負電圧状態における光学像を CMOS カメラで撮影し、その差分画像を積算することで、電界による光学像の微小変化をマッピングする。画像の差分をとることで変化分を抽出し、さらに積算することで微小変化を鋭敏に検出することができる。また、カメラの各素子で光強度の変化を一括測定することで、広範囲を短時間・非接触で測定できる。

(注8) 圧電応答力顕微鏡 (PFM)

強誘電ドメインを可視化する手法として広く利用されている測定法。強誘電体に電界を印加することで生じる変形(圧電応答)が電界と自発分極の相対方向に依存することを利用した手法。探針を強誘電体に接触させて局所的に電界を印加することで、その点における圧電応答を観測する。針の位置を掃引し、圧電応答マッピングすることで強誘電ドメインが可視化される。

【参考】

1. 有機トランジスタアレイの性能分布をイメージ化して評価する技術 (2015/07/02)
https://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2015/pr20150702/pr20150702.html
2. 半導体中のマイクロメートルスケールの電荷分布を可視化 (2018/06/22)
https://www.aist.go.jp/aist_j/new_research/2018/nr20180622/nr20180622.html
3. 薄膜トランジスタアレイの検査技術を大幅に高速・大面積化 (2018/01/15)
https://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2018/pr20180115/pr20180115.html
4. CMOS カメラを用いた強誘電薄膜のドメイン可視化技術 (2019/01/24)
http://www.t.u-tokyo.ac.jp/shared/press/data/setnws_201901241012545486023254_738082.pdf

8. 添付資料：

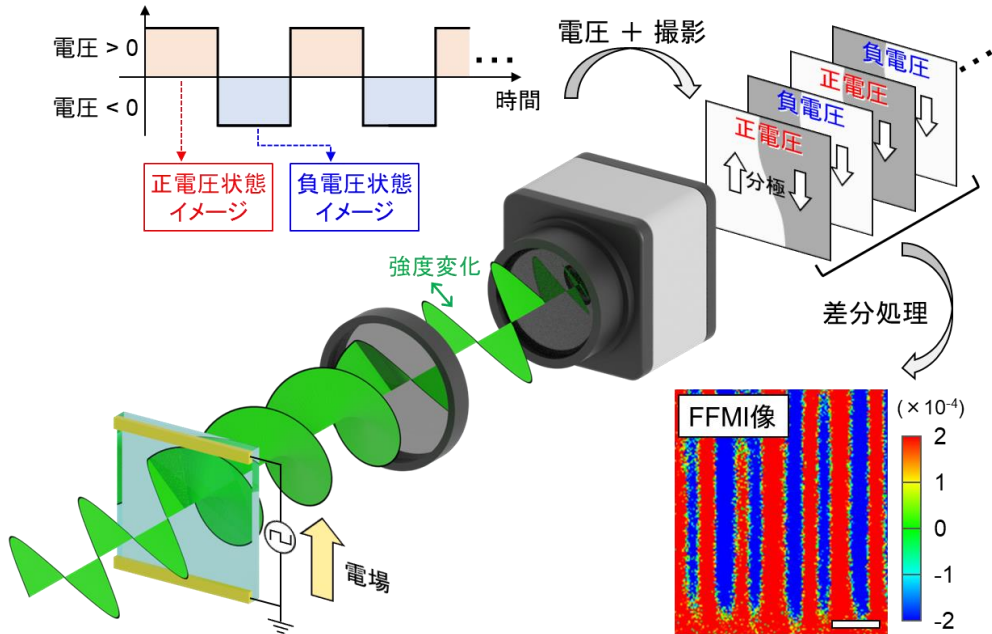


図1 複屈折FFMIによる強誘電ドメイン可視化の模式図

光学主軸に対し傾いた直線偏光を入射し、電界を印加した透明材料からの透過光の像を、偏光子を通してCMOSカメラにより撮影する。正電圧と負電圧を印加した場合の像をそれぞれ繰り返し測定することで、その高感度な差分イメージを得る。右下は得られたMBI単結晶薄膜の強誘電ドメイン構造。赤色と青色の領域は自発分極の向きが異なる強誘電ドメインを表している。スケールバー： $2 \mu\text{m}$ 。

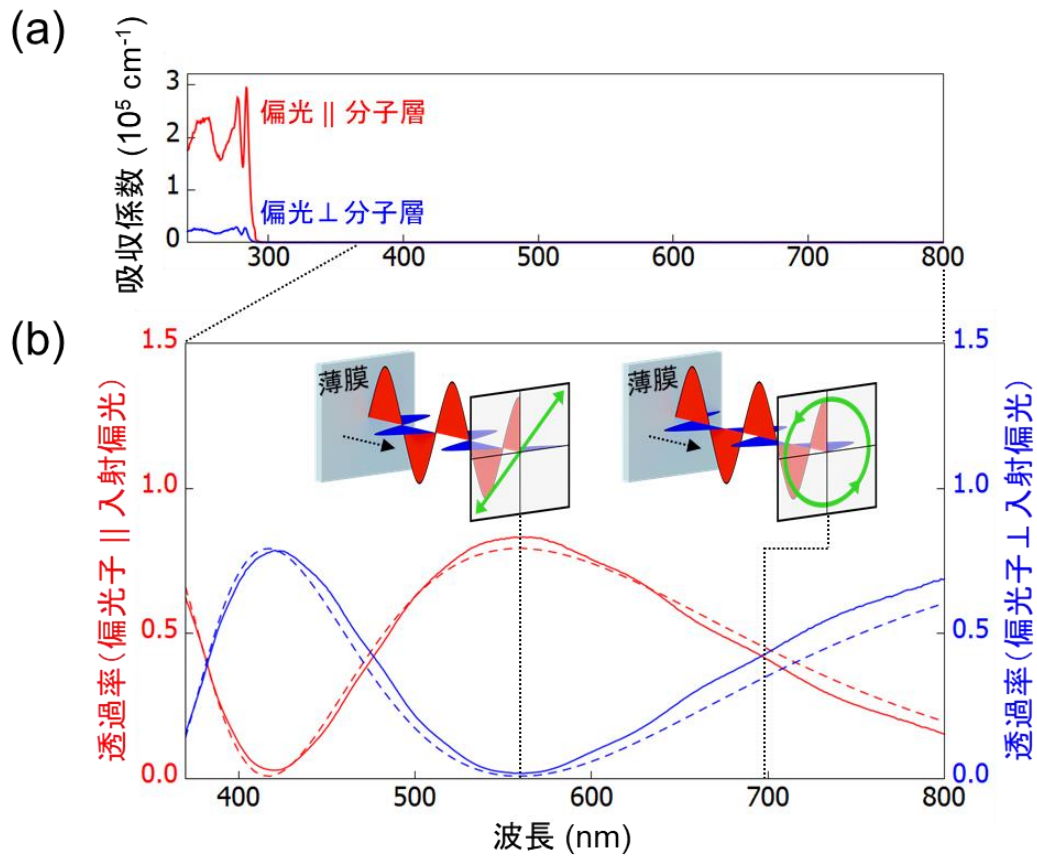


図2 MBI 薄膜の光吸収スペクトルと楕円偏光率

(a) MBI 単結晶薄膜の吸収係数。赤線と青線はそれぞれ偏光方向が異なる入射光に対する結果を示している。いずれも可視光域に吸収は見られない。(b) 光学主軸に対して 45 度傾いた直線偏光を入射した場合の透過光の楕円偏光率の波長依存性。赤と青のプロットは入射側と出射側の偏光子がそれぞれ平行および垂直な場合の結果を示し、実線は実験結果、破線は理論式によるフィッティング結果を示している。

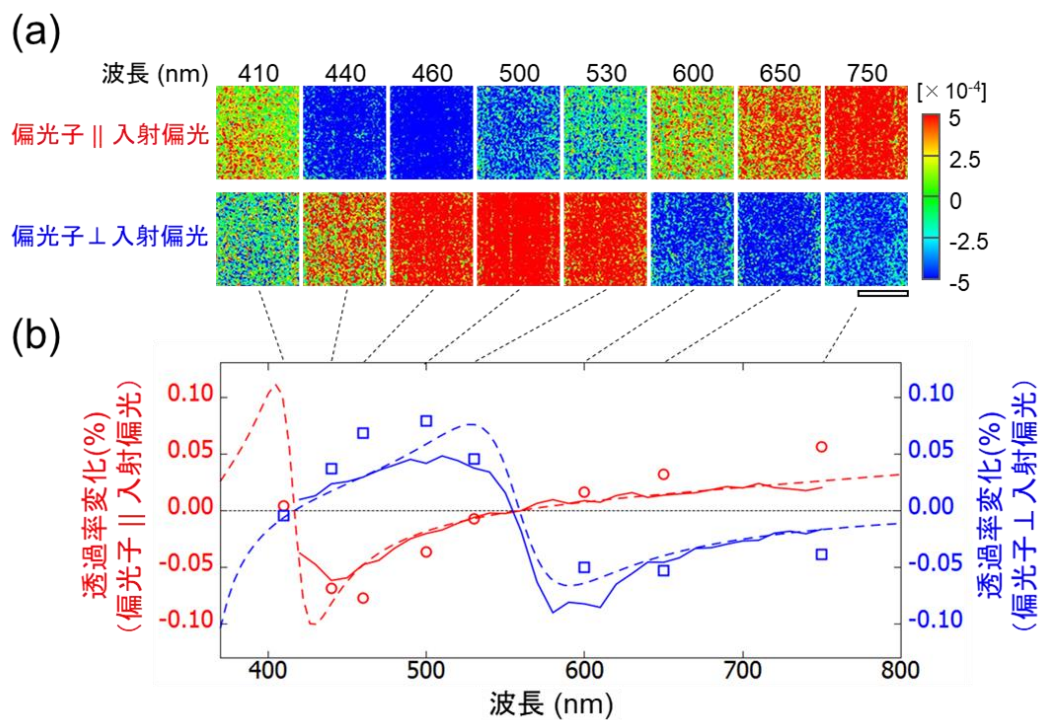


図3 複屈折 FFMI の波長依存

(a) 可視光域の様々な波長で測定した複屈折 FFMI 像。上段と下段は入射側と出射側の偏光子がそれぞれ平行および垂直な場合の結果を示している。(b) (a)で得られた複屈折 FFMI 信号の波長に対するプロット。四角印と丸印は、それぞれ(a)の上段、下段に対応。実線は複屈折 FFMI と同様にサンプルの前後に偏光子を設置して測定した電場変調スペクトル。点線は理論曲線によるフィッティング結果。