



Nikon Research R e p o r t

Vol.1 2019

Purpose of publication

This publication is being created to widely introduce the achievements of research and development activities conducted by Nikon Corporation. This is a result of R&D based on Nikon's core technologies of "opto-electronics" and "precision" technologies that have been incorporated in new products and/or often valued by external organizations such as academic societies. At the end of the report, the papers presented and published by our engineers in the previous year are listed.

Foreword



Representative Director
President & CEO
Toshikazu Umatate

Nikon Corporation was established in 1917 and celebrates its 103rd anniversary this year. Our core technologies are “opto-electronics technologies” and “precision technologies”. These have been providing cameras that can capture impressive moments all across our world, lithography systems for semiconductors and flat panel displays that are fundamental to industry, and microscopes that advance vital research. Through such businesses, we have been meeting customers’ expectations and social needs, while giving shape to our corporate philosophy “Trustworthiness and Creativity”.

On May 2019, Nikon announced the Medium-Term Management Plan for sustainable growth of enterprise value. Using our vast expertise in precision and optical technologies including new technologies acquired inside and outside company, we will execute the Plan not only for the existing business areas, but also for the areas of long-term growth. Specifically, we will focus on realizing the three areas of long-term growth defined in the Plan as our new growth engines. At the same time, we will push forward technological innovation, launch products that are recognized by customers as valuable, and contribute to social sustainability through our businesses. As a first step, we have decided to publish our first Nikon Research Report at this time.



General Manager
Research & Development Division
Kazuhiro Kido

Achievements of research and development in the new growth areas that were defined in the recent Medium-Term Management Plan need to be linked with Nikon businesses as quickly as possible in order to advance the Plan for increasing our enterprise value with a high degree of confidence. To meet customers’ expectations, Nikon’s research and development facilities are advancing technological activities with the highest priority every day. In addition, we are actively working not only on the development directly related to products, but also on basic studies in wider fields focusing on optical technology. We have decided to publish a Nikon Research Report to deliver the achievements of our research and development to everyone.

This first issue contains technical explanations of products released and announced in 2018 as well as the research and development papers valued by external organizations in the same year. From now on, Nikon will be disseminating technological information. Through Nikon Research Reports, I expect that everyone will be able to understand Nikon more deeply, and create opportunities to utilize our technologies further.

Nikon Research Report Vol.1

目次／CONTENTS

技術解説/Technical Reports

- 1 ニコン初FXフォーマットミラーレスカメラの開発
齊藤義久, 尾崎浩二
Development of Nikon's first FX-format mirrorless camera with interchangeable lenses
Yoshihisa SAITO and Koji OZAKI
- 4 高精細大型パネル量産を支える露光技術
酒匂直也, 野嶋琢己, 澤岡陽介, 諸江順一
Exposure Technology to support mass production of high-definition large-sized Panel
Naoya SAKO, Takumi NOJIMA, Yosuke SAWAOKA and Junichi MOROE
- 8 CNC 画像測定システム [NEXIV VMZ-H3030] の開発
山本健一, 門元伸吾, 森田喬之
Development of "NEXIV VMZ-H3030" CNC video measuring system
Kenichi YAMAMOTO, Shingo KADOMOTO and Takayuki MORITA

研究開発論文/Research and Development Reports

- 14 レーザー顕微鏡の解像限界算出のためのダイアグラム法
福武直樹
Diagram method for resolution limit calculation in laser microscopy
Naoki FUKUTAKE
- 24 繰り返し誘導遷移を利用した超解像非線形蛍光顕微鏡
嶽 文宏, 林 世莉
Super-resolution nonlinear fluorescence microscopy using repetitive stimulated transition
Fumihiko DAKE and Seri HAYASHI
- 30 超広視界双眼鏡 WX の開発
富田賢典, 福本 哲
Development of the super-wide field of view WX binoculars
Katsunori TOMITA and Satoshi FUKUMOTO
- 35 ライトフィールド光学と3次元空間の表現
岩根 透
Light-field optics, 3D space transformation onto 2D plane
Toru IWANE
- 41 ガス浮遊溶解で作製した Ga_2O_3 系ガラスの光学特性
吉本幸平, 江面嘉信, 上田 基, 水口雅史
Optical properties of Ga_2O_3 -based glasses prepared by aerodynamic levitation
Kohei YOSHIMOTO, Yoshinobu EZURA, Motoi UEDA and Masafumi MIZUGUCHI

- 47 Additive 型 Roll to Roll 微細配線形成技術に向けた光応答性表面処理材料の開発
川上雄介
Development of photoresponsive material toward fine patterning technology by roll to roll, additive type of process
Yusuke KAWAKAMI
- 53 深層畳込みニューラルネットワークを用いた電子顕微鏡画像スタックにおける細胞セグメンテーションの实用的方法
小西功記, 三村正文, 野中崇雄, 佐瀬一郎, 西岡秀夫, 須賀三雄
Practical method of cell volume segmentation in electron microscope image stack using deep convolutional neural network
Kohki KONISHI, Masafumi MIMURA, Takao NONAKA, Ichiro SASE, Hideo NISHIOKA and Mitsuo SUGA
- 58 燃焼反応の機能性評価によるプロセス全体最適志向の新製品開発
小西洋平, 野崎 潔, 齊藤卓一
New product development through process optimization based on functionality evaluation of combustion reaction
Yohei KONISHI, Kiyoshi NOZAKI and Takuichi SAITO
- 63 RtoR 直描露光装置を活用可能な有機薄膜トランジスタ湿式作製プロセスの開発
小泉翔平, 堀 正和, 林田洋祐, 内藤一夫, 川端誠司, 鬼頭義昭
Development of an organic thin-film transistor by a wet fabrication process utilizing roll-to-roll direct imaging exposure system
Shohei KOIZUMI, Masakazu HORI, Yosuke HAYASHIDA, Kazuo NAITO, Seiji KAWABATA and Yoshiaki KITO
- 68 リアルバーチャル・ブリッジ：現実空間のオブジェクトと仮想空間のオブジェクトの間を仲介するモジュール機構
高階知巳, 国米祐司
Real-Virtual Bridge: A Modular Mechanism to Mediate Between Real and Virtual Objects
Tomomi TAKASHINA and Yuji KOKUMAI
- 72 外部発表一覧



技術解説

Technical
Reports

ニコン初FXフォーマットミラーレスカメラの開発

齊藤義久*, 尾崎浩二*

Development of Nikon's first FX-format mirrorless camera with interchangeable lenses

Yoshihisa SAITO* and Koji OZAKI*

大口径マウントが可能にする卓越したレンズ性能を実感できるモデルとしてニコンFXフォーマット有効画素数4575万画素の高解像度モデル Z 7を2018年9月、暗所撮影、動画撮影ニーズに応えるモデルとしてニコンFXフォーマット有効画素数2450万画素のオールラウンドミラーレスモデル Z 6を2018年11月に発売した。ここでは Z 7、Z 6の様々な開発要素について説明する。

In September 2018, Nikon released the FX-format high-definition mirrorless camera "Z 7" with 45.7 effective megapixels to get the most out of the NIKKOR Z lenses' unprecedented optical performance with the large Z mount. Following this, the FX-format multi-functional mirrorless camera "Z 6" was released in November 2018, with 24.5 effective megapixels and superior performance to respond to the needs of shooting pictures and videos in low-light situations.

Key words レンズ交換式、ミラーレスカメラ
interchangeable lenses, mirrorless camera

1 はじめに

2018年8月23日、ニコン初のFXフォーマットミラーレスカメラ「Nikon Z 7」「Nikon Z 6」、NIKKOR Z レンズとアクセサリーで構成される「Z マウントシステム」を発表した。

本稿では Z 7、Z 6の様々な開発要素について解説する。

2 Z マウントシステム

次世代の光学性能と薄型化を実現するため、ニコン初のFXフォーマットミラーレスカメラ「Z 7」「Z 6」と、NIKKOR Z レンズとアクセサリーで構成される「Z マウントシステム」を開発した。Z マウントシステムはφ55 mmの大口径マウント、16 mmのショートフランジバックという特徴がある。

大口径マウントとショートフランジバックの利点は光学設計の自由度が拡大することで、より高い光学性能のレンズやより小型のレンズなど多彩なレンズを設計できるようになり、マウント内を通る光を増やすことができるため、

撮像素子に届く光の量が増え、F値の小さい明るいレンズなども設計することができる。また、NIKKOR F レンズと比べ鏡筒内スペースが増えるため、AF駆動のためのアクチュエータや機構部材の配置の自由度も拡大し、より高速高精度なAFの実現や鏡筒全長の短縮などに有利になっている。

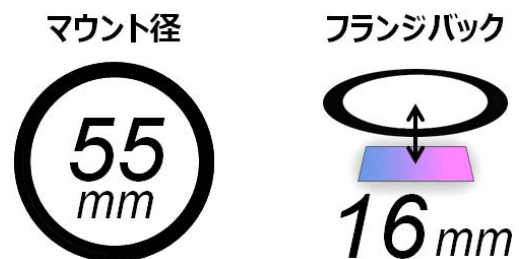


Fig. 1 マウント径とフランジバック

3 電子ビューファインダー (EVF)

ファインダーは視野率約100%、倍率約0.8倍、対角視野角約37.0°、QuadVGA (約369万ドット) 有機ELパネル採用となっている。

ファインダー光学系はニコン独自の光学技術を活かした

ガラス非球面レンズ、高屈折率樹脂の使用、反射防止コーティングにより、歪みが少なく隅々までクリアで明るい視界を実現している。パネルは高精細、高ダイナミックレンジ、高輝度なQuad VGAパネルを採用している。画像処理プロセスは無理のない画づくりにより表示パネルに最適化した見やすい画像を表示し、マニュアルフォーカス時、ピントの山も見つけやすくなるよう設計している。また、ファインダー倍率を約0.8倍にすることで、視野を広くしている。

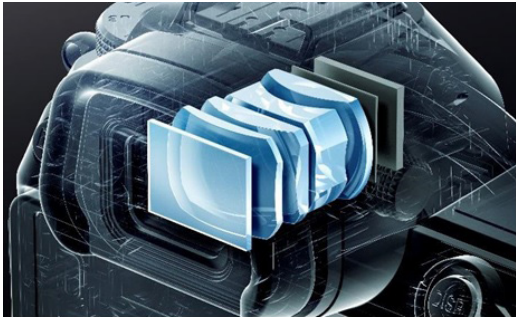


Fig. 2 EVF光学系

4 信頼性

様々な状況で安心して使用頂けるようD850同等のシャッター耐久、堅牢性、防塵防滴性能を満たし、システムとしての高い信頼性を実現している。

シャッター機構はD850同等のブレーキ機構や羽根材料などを採用し、シャッター耐久20万回を達成している。ボディには前後、トップカバーに軽量で堅牢なマグネシウム合金を使用し、高い剛性と耐久性を達成している。各接合部、リリースボタン、電池蓋などに効果的なシーリングを実施し高い防塵・防滴性を確保している。



Fig. 3 シーリング

5 センサーシフト式ボディ内5軸手ブレ補正

ニコンのレンズ交換式カメラとしては初めてセンサーシフト式ボディ内5軸手ブレ補正機構を採用した。

カメラブレを直接検知するジャイロセンサーの情報と画像解析による動きベクトル情報を、従来の手ブレ補正機構で培ったニコン独自のアルゴリズムを用いて処理し、高精度にブレ量を演算。Yaw、Pitch、近距離撮影で目立ちやすくなる上下、左右のブレに加え、動画撮影時に特に目立つRollの計

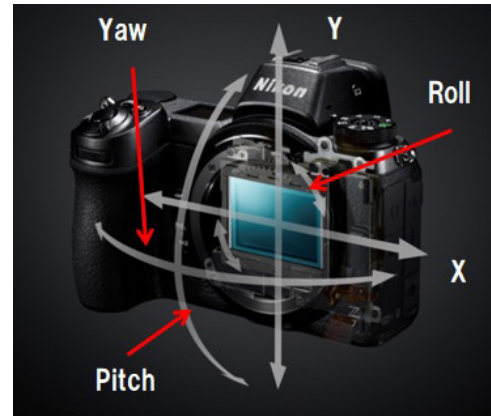


Fig. 4 センサーシフト式ボディ内5軸手ブレ補正

5軸のブレを補正し、幅広い状況下で高い効果を発揮。

カメラの電源オフ時などに手ブレ補正ユニットを固定するロック機構を搭載。これは撮像素子ユニットを機械的に固定する機構で、携行時カメラに不用意に衝撃が加わった場合などに撮像素子を保護する役割をもつ。また、タイムラプス動画撮影時のわずかな構図のズレを防止するのにも有効で、消費電力を抑える効果もある。

6 デザイン (操作性, 小型化)

D-SLRで評価の高かったホールディング性や操作性をミラーレスの小型ボディに凝縮したデザインになっている。

大口径レンズを装着されることを想定し、左手で重心を支えつつ、右手でしっかりホールドできるグリップにしている。光学ファインダーを持たないミラーレスカメラは、デザインも部品レイアウトも自由度が上がる。Zマウントシステムは、D-SLRよりEVFユニットを背面カバー側にシフトさせることでファインダーを覗いた時、鼻が当たりにくく、撮影に集中できるようにした。EVFは撮影後の情報が確認できるためファインダーを覗いた状態で設定を変える撮影スタイルになる。そのためファインダーを覗きながら設定・撮影・再生までの一連の操作を右手だけでスムーズに行えるようにした。



Fig. 5 ホールディング

7 NIKKOR F レンズとの互換性

ZマウントシステムでもFマウントシステムユーザーのレンズ資産を活かせるようにしている。

マウントアダプターFTZを使用することでAI NIKKOR以降のNIKKOR F レンズをAF/AE完全互換で93本、部分互換を含むと約360本使用可能としている。ボディ内手ブレ補正機能は、手ブレ補正機能搭載、非搭載レンズいずれもYaw, Pitch, Rollの3軸を補正する。レンズの精度や性能は、D-SLRに装着した場合と同等となるように設計している。



Fig. 6 NIKKOR F レンズとの互換性

8 高画質

撮像素子に像面位相差AF画素搭載の裏面照射型CMOSセンサーを採用。Z7は有効画素数4575万画素と高画素ながら、ISO感度64~25600と感度全域でダイナミックレンジの広い画像が得られる。Z6は有効画素数2450万画素でISO感度100~51200と優れた高感度性能を達成。

両機種とも最新の画像処理エンジンEXPEED6と連携し高感度でも解像感を保ちながら効果的にノイズを抑制している。

また、ピクチャーコントロールでシャープネスを調整する既存の「輪郭強調」と「明瞭度」に加え、新たに「ミドルレンジシャープ」を搭載。

9 動画

4K UHD/30p 動画をフルフレームで撮影を実現している。4K UHD動画は全画素読み出しによる豊富な情報を活用^{*}。新画像処理エンジンEXPEED 6の働きで解像感の高い画づくりを実現している。また新規に動画撮影用のAFモードとして、AF-Cを搭載し思い通りのAF開始と停止を制御可能にし、AF速度、AF追従感度の設定を組み合わせることで、印象的なシーン撮影も可能とした。

^{*}Z7は、「DXベースの動画フォーマット」時

10 まとめ

Zマウントシステムは大口径の新マウントとショートフランジバックを採用し、新次元の光学性能を追求したシステムである。Z7は大口径マウントが可能にする卓越したレンズ性能を実感して頂くための高画素モデルとして、Z6は暗所撮影、動画撮影ニーズに応えるオールラウンドモデルとして開発した。NIKKOR Zは58/0.95Noctなど驚異的な光学性能を実現するために、FTZは膨大なNIKKOR F レンズの性能を損なうことなくZマウントシステムで活用可能にするために開発した。

発売後、多くの高評価とともに要望も届いており、これら要望に真摯に耳を傾け続けることでFマウントシステムとならぶカメラシステムとして発展させていきたいと考えている。

高精細大型パネル量産を支える露光技術

酒匂直也*, 野嶋琢己*, 澤岡陽介*, 諸江順一*

Exposure Technology to support mass production of high-definition large-sized Panel

Naoya SAKO*, Takumi NOJIMA*, Yosuke SAWAOKA* and Junichi MOROE*

FX-103S/103SHは、第10.5世代ガラスプレート（2940 mm×3370 mm）に対応した高精度・高生産性を兼ね備えた大型パネル向けのFPD露光装置である。マルチレンズ方式の採用により、広範囲一括露光フィールドを確保し、露光回数の増加を抑制している。一括露光フィールドが広範囲であるため、大型のフォトマスクが必要になってくる。フォトマスクの大型化に伴い、たわみ誤差がより大きくなり、結果的に、露光におけるデフォーカス量が大きくなる。デフォーカスは、薄膜トランジスタ（TFT）回路パターンの線幅精度に悪影響を及ぼす。その影響を回避するために、フォーカス補正技術を採用し、デフォーカス量を低減させている。結果として、高い解像度を実現している。

TFT回路パターンは、複数の回路パターンを積層させて作る必要があり、回路パターンの重ね合わせ精度が重要になる。第10.5世代ガラスプレートに対応する場合、ステージの大型化が必要であるが、ステージの位置精度やアライメントマークの計測精度が悪化し、重ね合わせ精度の悪化が懸念される。その懸念を払拭するために、ステージの構成を一新し、高い重ね合わせ精度を達成している。同時に、ステージの高速駆動化も実現し、高い生産性に貢献している。

FX-103S/103SH is an FPD exposure system for large panels with high precision and high productivity corresponding to a 10.5th generation glass plate (2940 mm × 3370 mm). Wide-area batch exposure field by adopting the multi-lens method is prepared, and the increase in the number of exposures is suppressed. Because the batch exposure field is wide, a large photomask is required. As the photomask becomes larger, the bending error increases, and as a result, the defocus amount in the exposure increases. The defocus adversely affects the line width accuracy of the thin-film transistor (TFT) circuit pattern. In order to avoid the influence of defocus, the focus correction technology is adopted and the defocus amount is reduced, resulting in high resolution.

The TFT circuit pattern needs to be fabricated by laminating a plurality of circuit patterns; therefore, the overlay accuracy of the circuit pattern becomes important. When it corresponds to the 10.5th generation glass plate, the stage needs to be enlarged; however, the positioning accuracy of the stage and the measurement accuracy of the alignment mark deteriorate, and the overlay accuracy may also deteriorate. In order to eliminate this concern, the stage configuration has been redesigned to achieve a high overlay accuracy. Simultaneously, high-speed driving of the stage is also realized, contributing to high productivity.

Key words 高精細大型パネル, FPD露光装置, 第10.5世代ガラスプレート, フォーカス補正技術, アライメント技術
high-definition large-sized panel, FPD lithography systems, 10.5th generation glass plate, focus correction technology, alignment technology

1 はじめに

(1) FX-103S/103SH

FX-103S/103SHは、第10.5世代ガラスプレート（2940 mm×3370 mm）に対応し、65インチワイドテレビや75インチワイドテレビなどの大型パネルを一括で露光し、効率良く生産できるFPD露光装置である（Fig. 1）。

FX-103S/103SHは、スマートフォンなどの中小型高精細パネルの生産に適しているFX-67S2の技術と、テレビ用パネルの生産に適しているFX-86SH2の技術とを融合させた高精細の大型パネルに対応したFPD露光装置である。

第10.5世代ガラスプレート

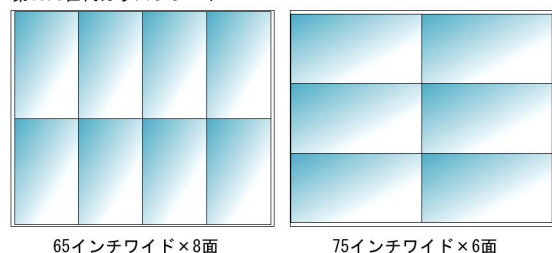


Fig. 1 第10.5世代プレートのパネルレイアウト

(2) FX-103S/103SHの基本構成とマルチレンズシステム FPD露光装置は、液晶ディスプレイや有機ELディスプレイ

* FPD装置事業部 第二開発部

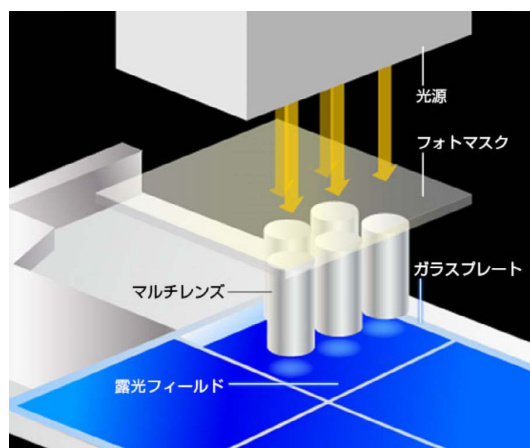


Fig. 2 FPD露光装置の概念図

レイに必要な薄膜トランジスタ (TFT) 回路をガラスプレートに焼き付けるための装置である。

FX-103S/103SH の概念図を Fig. 2 に示す。TFT 回路パターンの原版であるフォトマスクに、光源から露光光を照射し、投影光学系 (マルチレンズ) を介して、ガラスプレートに TFT 回路パターンを焼き付ける。ガラスプレートの動きにフォトマスクの動きを同期させ、ガラスプレート全面に焼き付け処理を繰り返す (スキャン動作)。

FX-103S/103SH の大きな特徴として、投影光学系には、マルチレンズシステムが採用されている。これは、複数のレンズを2列に配置し、個々のレンズを精密に制御することで、1つの大きなレンズに見立てて、ガラスプレート上を広範囲に且つ高精度に露光している。

(3) プレートサイズ大型化

ガラスプレートサイズは、年々大型化が進んでいる。Fig. 3 はガラスプレートサイズとマルチレンズ本数の変遷を示している。第10.5世代と呼ばれるガラスプレートサイズは、前述のように 2940 mm × 3370 mm となっており、第8世代のガラスプレートサイズに対して、面積比で1.8倍となっている。ガラスプレートサイズ大型化に対応するために、FPD 露光装置としては、生産性の向上が不可欠である。そ

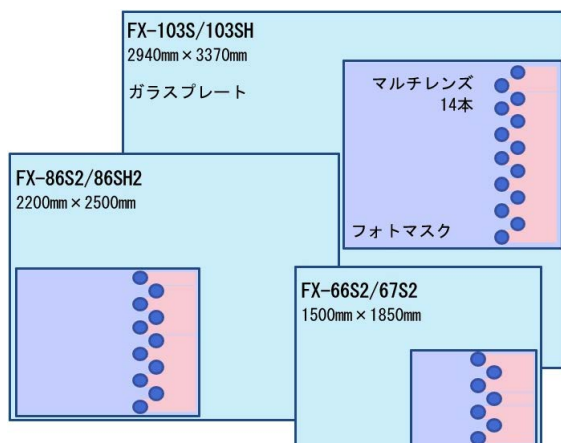


Fig. 3 プレートサイズとマルチレンズ本数の変遷

のためには、一括露光フィールドの拡大が必要になる。広範囲な露光フィールドを確保することで、露光回数の増加を抑制できる。マルチレンズの特性を活かし、ガラスプレートサイズに合わせてレンズ数をやすことで、一括露光フィールドを拡大した。

(4) FX-103S/103SH 基本仕様

FX-103S/103SH の基本仕様を Table 1 に記す。

Table 1 FX-103S/103SH の基本仕様

	FX-103S	FX-103SH
解像度 (L/S)	3.0 μm (g+h+i 線)	2.2 μm (g+h+i 線)
投影倍率	1 : 1	
重ね合わせ精度	$\leq \pm 0.5 \mu\text{m}$	
プレートサイズ	2940 mm × 3370 mm	
タクトタイム	60秒/プレート 条件：4スキャン, g+h+i線, 30 mJ/cm ²	

<解像度>

FX-103SH では、FX-67S2や FX-86SH2で開発した照明光学系および投影光学系の解像度向上技術の適用や、後述するフォーカス補正技術により、解像度 2.2 μm (L/S) を実現している。

<重ね合わせ精度>

FX-103S/103SHのプレートステージは、サイズは、約 (X) 4000 mm × (Y) 4000 mm × (Z) 1500 mm, 重量は約 7000 kg の大型重量物であるが、ステージ制御性の向上、および位置計測システムの計測誤差軽減のために、新規設計を行い、重ね合わせ精度 $\pm 0.5 \mu\text{m}$ という高い精度を達成している。

<タクトタイム>

ガラスプレートの大型化に伴い、プレートを支持するプレートステージも大型化する必要がある。一方、生産性向上のためには、ステージ駆動の高速化が求められるが、大型ステージの場合、高速化が困難になってくる。そこで、ステージ構造を一新することで、剛性を維持しながら、ステージ駆動の高速化を実現した。また、露光シーケンスやキャリブレーションシーケンスの見直しもを行い、高い処理能力を実現している。65インチワイドテレビ、75インチワイドテレビの生産性は、それぞれ毎時480枚、322枚を達成し、大型パネルの量産に貢献している。

2 フォーカス補正技術

(1) フォトマスクのたわみ

露光における像面のデフォーカスは、TFT 回路パターンの電気特性を左右する線幅誤差を発生させ、完成品であるディスプレイの品質を悪化させる。

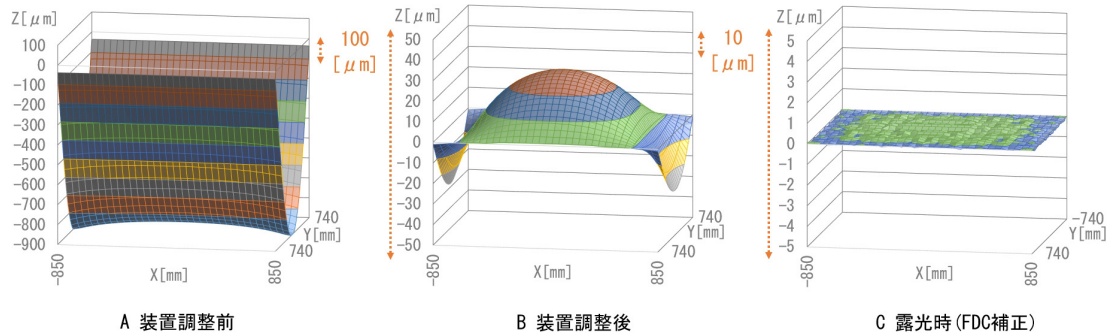


Fig. 4 フォトマスクのたわみによるフォーカス誤差

フォトマスクは装置のマスクステージにて支持されるが、その自重によりたわみが発生する (Fig. 4 A)。FX-103S/103SHでは、フォトマスクのたわみ形状に合わせてマルチレンズの像面調整を行っているが、調整しきれない成分 (たわみ調整誤差) が発生する (Fig. 4 B)。また、大型パネルの効率的な生産にはフォトマスク大型化が必要となり、それに伴いたわみ調整誤差も増大する。

(2) フォーカス・ダイナミック補正技術

ディスプレイの品質を安定させるためには、フォトマスクのたわみ調整誤差を補正することが重要である。

FX-103S/103SHでは、マルチレンズの特性を活かし、フォーカス・ダイナミック補正 (FDC) にてたわみ誤差を大幅に低減している。これは、個々のレンズのフォーカス機構およびフォーカスチルト機構を露光と同期させダイナミックに駆動することで実現している (Fig. 5)。

(3) 補正の効果

FDCによる補正効果を Fig. 4 C に示す。FDCを実施することで、マスクたわみ誤差によるデフォーカスを低減で

きる事がわかる。

3 アライメント技術

(1) アライメント用マークの計測精度

TFT回路パターンは、複数の回路パターンを積層させて作られている。TFTの性能は、回路パターン間の重ね合わせ精度によっても左右されるため、FPD露光装置には、アライメント (重ね合わせ) の対象となる回路パターンに含まれる、アライメント用マークの計測精度が求められる。

第10.5世代では、ガラスプレートとともにステージを大型化した。第8世代で使用されているステージをガラスプレートのサイズに合わせて大型化しても、重量や剛性の影響でステージの位置精度が悪化し、アライメント用マークの計測精度を維持できない懸念があった。

FX-103S/103SHでは、重量物を支える柱状の支持機構を備えた、新しいコンセプトのステージを採用することで、従来のコンセプトで作るより小型化することができ、ステージの位置精度と、アライメントマークの計測精度を維持している。

(2) 非線形アライメント技術

ガラスプレートの大型化に伴い、TFT製造プロセス中の熱などの影響により、回路パターンの非線形な変形が大きくなる。

非線形アライメント技術は、マルチレンズの特性を生かし、個々のレンズ毎に結像位置や像回転、像倍率を制御することで、回路パターンの形状に合わせて露光形状を変えることができる (Fig. 6)。

(3) 重ね合わせ精度

重ね合わせ精度実績を Fig. 7 に示す。FX-103S/103SHは、ガラスプレートの大型化や、マルチレンズの特性を生かした精度向上技術を採用することで、重ね合わせ精度 ± 0.5 μm を実現している。

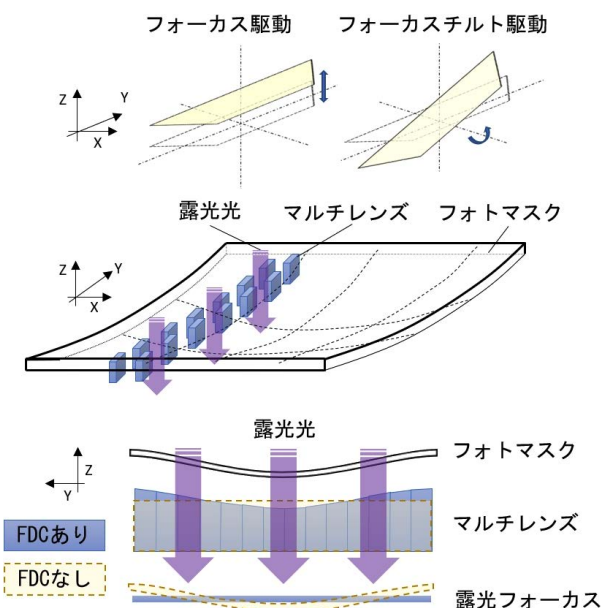


Fig. 5 フォーカス、フォーカスチルト駆動とFDC動作

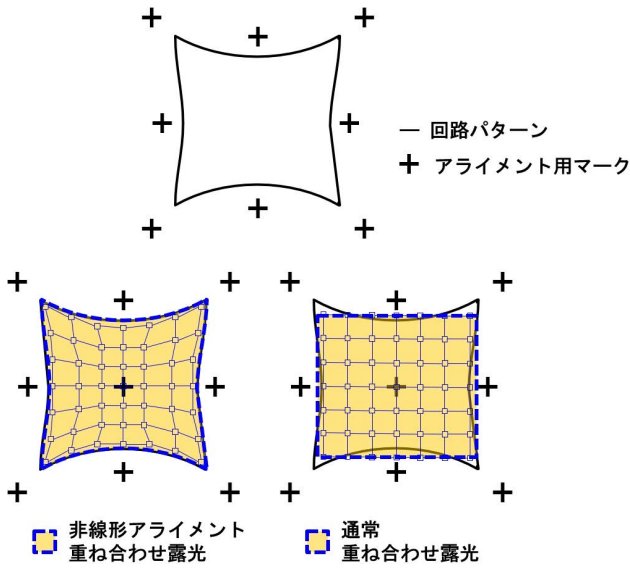


Fig. 6 非線形アライメント技術

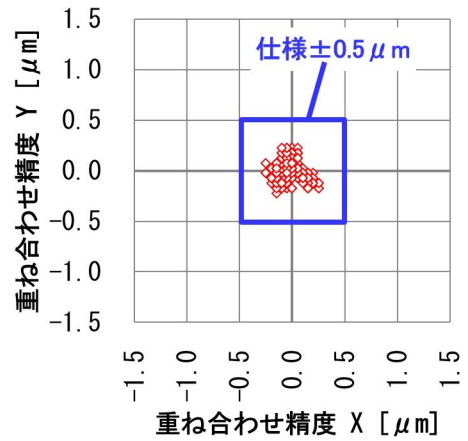


Fig. 7 重ね合わせ精度実績

4 マスクサイズを超える大型パネル生産技術

FX-103S/103SHでは、フォトマスク上のパターンよりも大きなパネルを露光することができる。この機能をVFS (Variable Field Stop) と呼び、昨今の大型パネル生産に貢献している。通常、第10.5世代フォトマスクサイズでは75インチワイドパネルまでを一括露光するが、VFS機能により例えば130インチワイドパネルを分割して露光することも可能となる。ガラスプレート1枚あたり130インチワイドパネルが2パネルと効率的な生産をサポートする (Fig. 8)。

VFS機能はフォトマスク上のパターンを分割し、ガラスプレート上でシームレスに継ぎ合わせる機能である。ガラスプレート上の上下パターンの継ぎ合わせ部分に幅を持たせ、連続的に露光量が変化する継ぎ合わせ部をオーバーラップさせて露光する (Fig. 9)。すなわち、上側のパターンでは継ぎ合わせ部分の露光量を上から下へ向かって漸減させ、逆に下側のパターンでは漸増させる。すると、継ぎ合わせ部分で上下パターン積算露光量が100%となる。このように、非継ぎ合わせ部と同等の露光量を確保することで、パターンのシームレスな継ぎ合わせを実現している。

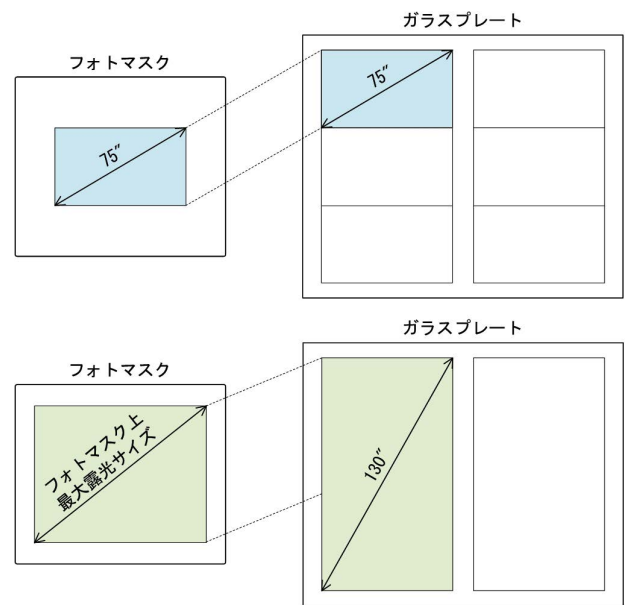


Fig. 8 フォトマスク最大露光サイズとパネルサイズ

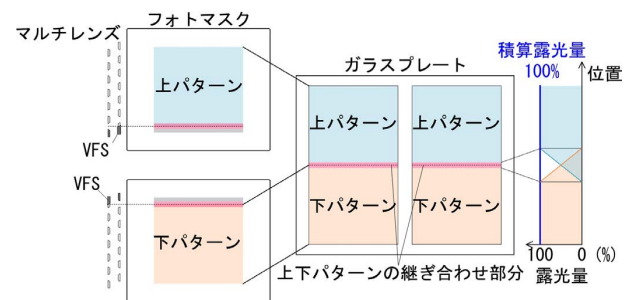


Fig. 9 VFSによるパターンの継ぎ合わせ

5 まとめ

FX-103S/103SHは第10.5世代ガラスプレートでの高精細大型パネルのTFT回路パターン製造が可能な唯一の露光装置である。独自のマルチレンズシステムを採用、その特徴をいかし一括露光フィールド拡大を実現した。また、本装

置はサイズ拡大に留まらず、フォーカス補正技術、アライメント技術を駆使し、高精度、効率的な大型パネル生産に寄与している。今後も更に市場の期待に応える装置を開発し、将来のディスプレイ産業の発展に貢献し続けていく。

CNC 画像測定システム「NEXIV VMZ-H3030」 の開発

山本健一*, 門元伸吾*, 森田喬之**

Development of “NEXIV VMZ-H3030” CNC video measuring system

Kenichi YAMAMOTO*, Shingo KADOMOTO* and Takayuki MORITA**

ニコンは2018年に CNC (computer numerical control) 画像測定システムの高精度モデルとなる NEXIV VMZ-H3030 を発売した。VMZ-H3030 は、前機種 VMR-H3030 に比べて、新しい倍率の光学ヘッド (タイプ 4 : 4~60×) が選択可能となり、高倍ヘッド (タイプ TZ : 1~7.5×/16~120×) に長作動距離と高 NA を両立した新しい対物レンズを採用している。さらに、3 種類の入射角度に対応した 8 分割リング照明、薄い透明体の検出を可能とした TTL (through the lens) レーザーオートフォーカスを搭載している。

VMZ-H3030 の XY ステージは、前機種 VMR-H3030 より V-F (フラット) ニードルローラーガイド、Y 軸にデュアルリニアエンコーダーの構造を継承している。寸法測定ソフトウェアは新しくなり、位置や角度がずれていても検出可能な回転サーチ、マップ測定、検査成績書作成機能が追加された。

これらの技術により VMZ-H3030 は、様々な測定対象 (金型、各種電子部品、微細パッケージ基板、ウェーハパターン等) の高精度な測定の要求に応えることができる製品となっている。

Nikon released the “NEXIV VMZ-H3030” CNC video measuring system, a high accuracy model, in 2018. Compared to the previous model, VMR-H3030, VMZ-H3030 has a new optical head Type 4, whose magnification can be selected (4 to 60×). A new objective lens that combines a long working distance and high NA with a high-magnification head Type TZ (1 to 7.5×/16 to 120×) has been adopted. Furthermore, it has been equipped with 8 division ring illumination corresponding to 3 kinds of incident angles and TTL (through-the-lens) laser auto focus that enables detection of thin transparent objects.

The XY stage of VMZ-H3030 inherits the V-F (flat) needle roller guide from the previous model, VMR-H3030, and the dual linear encoder structure on the Y axis. The dimension measurement software has been newly developed, and functionalities for rotation search, map measurement, and inspection report preparation have been added that remain operational even if the position or angle is deviated.

With these technologies, VMZ-H3030 is a product that can meet the requirements for high accuracy measurement of various objects (molds, various electronic parts, micro package substrates, wafer patterns, etc.).

Key words CNC 画像測定システム、位相フレネルレンズ、レーザーオートフォーカス、高精度ステージ、寸法測定ソフトウェア
CNC video measuring system, phase Fresnel lens, laser auto focus, high accuracy stage, measurement software

1 はじめに

CNC (computer numerical control) 画像測定システムは、電子部品や機械部品の微細形状の測定に広く使用されている。

ニコンでは CNC 画像測定システムを NEXIV の名称で以下のシリーズを販売している。

- VMZ-R シリーズ : スタンダードモデル
- VMA シリーズ : 広視野モデル
- VMZ-K シリーズ : コンフォーカルモデル
- VMZ-H3030 : 高精度モデル

この中で高精度モデル VMZ-H3030 は 2018 年より販売を開始し、量産機を出荷している。VMZ-H3030 の主な測定対象としては、金型、各種電子部品、微細パッケージ基板、ウェーハパターン等がある。

本稿では、VMZ-H3030 について、前機種 VMR-H3030 より進化した光学系、照明、レーザーオートフォーカス (AF)、寸法測定ソフトウェア及び、前機種より継承した高精度ステージに関して述べる。

* 産業機器事業部 開発部
** 光学本部 第一設計部

2 CNC 画像測定システムの特徴

測定顕微鏡や投影機などの従来の光学測定機は、被測定物を拡大して非接触で高精度に測定できる特徴を持つ。それらの光学測定機の特徴に加えて、CNC 画像測定システムは、画像処理と CNC 制御ステージ、CNC 制御調光、オートフォーカス等により、自動化、高精度化、高速化を実現している。

3 VMZ-H3030の概要

VMZ-H3030は、XY ステージとその上部に Z 軸で上下する顕微鏡の光学系を備えた光学ヘッドを搭載している。光学ヘッドは倍率により 5 種類から選択可能である。前機種 VMR-H3030より進化した点を以下にあげる。

- タイプ 4 光学ヘッド（光学倍率：4～60×）追加
- タイプ TZ 光学ヘッドに高 NA (0.6) の対物レンズを採用
- 光源に白色 LED を採用した垂直落射照明、透過照明
- 3 種類の入射角度に対応した 8 分割リング照明
- 薄い透明体の検出を可能としたレーザー AF
- XGA（高画素）カメラのオプション追加
- Z ステージの新駆動系による低速での操作性改善
- 回転サーチ、マップ測定、検査成績書作成機能の追加された新しい寸法測定ソフトウェア

高精度な XY ステージは V-F（フラット）ニードルローラーガイド、デュアルリニアエンコーダーを使用した構造を前機種 VMR-H3030より継承している。

安全規格は、最新の EC 機械指令、EMC 指令、RoHS 指令、SEMI S2/S8に対応している。

Table 1 に VMZ-H3030の主な仕様を、Fig. 1 に外観を示す。

4 VMZ-H3030に搭載されている技術

(1) 光学系

1) NEXIV シリーズに搭載されている光学技術

一般に画像測定システムの光学性能として特に重要なのが低ディストーション（歪曲収差）と高いテレセントリック性、コマ収差低減である。

ディストーションとは Fig. 2 のように測定対象を画面内で歪ませる収差で測定精度に大きく影響するものである。

テレセントリック性は画像のピントずれにおける測定精度の悪化に影響するものである。テレセントリック性の高い光学系では焦点位置から外れてボケてしまった画像でも点像の強度分布重心位置が変化することを抑え、測定誤差を小さくすることができる。Fig. 3 は物体側がテレセントリックな光学系である。物体が O から P に動いてピントが

Table 1 Specifications of VMZ-H3030

形式	シングルコラム XY ステージ形
ストローク (X, Y, Z)	300×300×150 mm
最小表示単位	0.01 μm
被検物最大質量	30 kg（精度保証値：10 kg）
精度保証環境	20°C ± 0.5 K
駆動最高速度 XY/Z	100 mm/s/50 mm/s
駆動最低速度 XY/Z	0.01 mm/s/0.001 mm/s
測定精度	$E_{UX,MPE}, E_{UY,MPE}: 0.6 + 2L/1,000 \mu m$ $E_{UXY,MPE}: 0.9 + 3 L/1,000 \mu m$ $E_{UZ,MPE}: 0.9 + L/150 \mu m$
カメラ	VGA 1/3" B/W/ カラー XGA 1/3" B/W/ カラー (カラーカメラはタイプ 1, 2, 3のみ対応)
光学ヘッド：光学倍率	タイプ 1：0.5～7.5× タイプ 2：1～15× タイプ 3：2～30× タイプ 4：4～60× タイプ TZ：1～7.5×/16～120×
AF	TTL レーザー AF/画像 AF
照明	タイプ 1, 2, 3, 4：垂直落射、透過、8 分割リング (タイプ 1, 2, 3 は 3 角度、タイプ 4 は 1 角度) タイプ TZ：垂直落射、透過、暗視野 ※全系統白色 LED 光源
供給電源	AC100～240 V 50/60 Hz
消費電流	5 A ～ 2.5 A
外観寸法 (W×D×H)	1,000×1,100×1,750 mm
質量	約 500 kg
設置寸法 (W×D)	3,000×2,800 mm
精度規格	ISO10360-7



Fig. 1 View of VMZ-H3030¹⁾

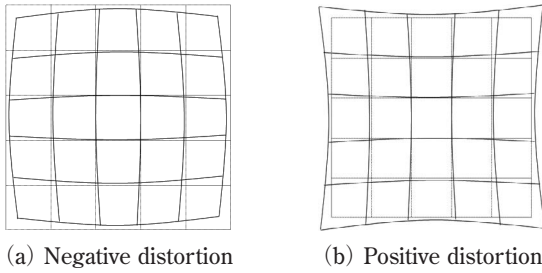


Fig. 2 Distortion

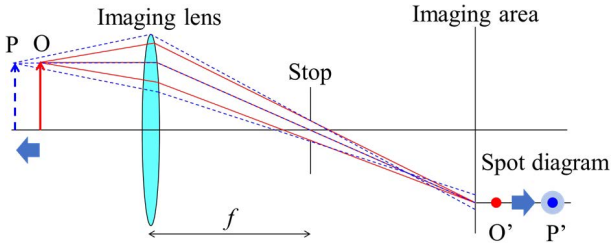


Fig. 3 Telecentric optical system

ずれてしまっても撮像面上の重心はほとんど変化しないことが分かる。

これによりテレセントリック光学系では Fig. 4 のように高さのある測定対象でもエッジ位置がシフトせず測定できる。

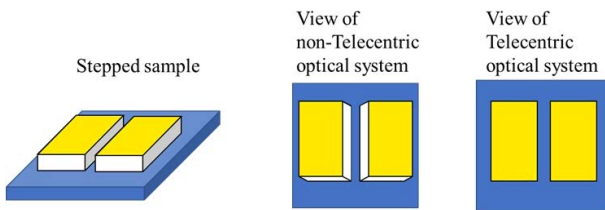
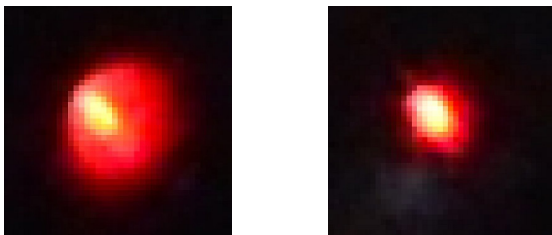


Fig. 4 Comparison of Telecentric optical system

重心変化抑制にはコマ収差の低減も肝要である。光学系にコマ収差があると、焦点からずれたとき点像の重心がシフトして測定誤差が生じる。Fig. 5 はピンホール画像であり、コマ収差が (a) 大きいものと (b) 小さいものを比較している。コマ収差が大きい場合には画面右下側に光量分布が尾を引き、ピンホール像の強度分布重心が右下側にシフトしていることが分かる。



(a) Large coma aberration (b) Small coma aberration

Fig. 5 Comparison of coma aberration

コマ収差は設計値に加え組立時のレンズ偏心などでも生じるため、製造時においてズーム倍率ごとに光学系の偏心

を抑えた調整が必要である。

NEXIV シリーズでは以上のディストーション、テレセントリック性、コマ収差に配慮した設計、製造がなされ高精度な測定が可能になっている。

2) VMZ-H3030で更新された光学技術

さらに VMR-H3030 から VMZ-H3030 への移行で光学系では以下の項目が更新された。

(1) VMR-H3030 におけるタイプ 1～3 光学ヘッドに対しタイプ 4 光学ヘッドを追加した。これにより作動距離 30 mm と高い NA (0.465) を確保しつつ、測定の倍率域が高倍側に拡大された。段差があり作動距離が必要なワークの測定において、これまでよりも微細な領域の測定が可能になっている。

(2) タイプ TZ 光学ヘッドでは位相フレネルレンズを使用する対物レンズを採用したことで色収差の低減を有利に行うことができ、一般にトレードオフの関係にある作動距離の確保と高 NA と収差の低減を両立することが可能になった。その結果作動距離は従来の 9.8 mm から 11 mm に長くなり、NA は 0.55 から 0.6 へと大きくなったことで解像力が向上し、さらに高精度な測定が可能になっている。

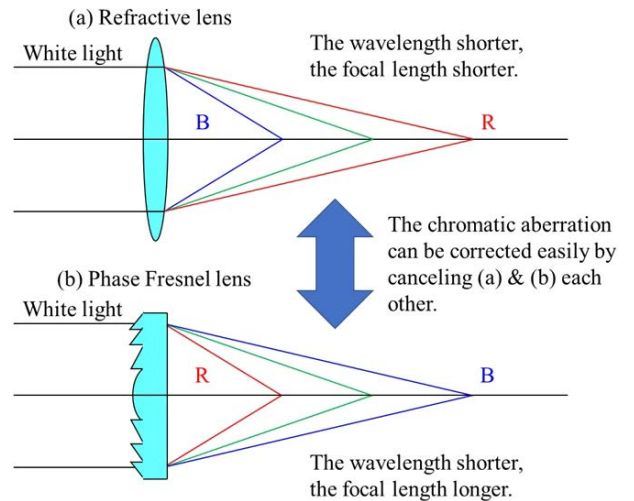


Fig. 6 Effect of Phase Fresnel Lens

(2) 照明

1) 光源に白色 LED を採用した垂直落射照明、透過照明

VMZ-H3030 は、垂直落射照明、透過照明、8 分割リング照明の 3 系統の照明を搭載し、それぞれ CNC 制御で調光可能であり、被測定物に応じて使用する。

一般的には、被測定物の外形、貫通した穴、ガラス基板上のパターン等、透過照明で検出可能なものは透過照明を使用し、透過光で検出できない場合は、垂直落射照明を使用する。

VMZ-H3030 の垂直落射照明、透過照明の光源は、前機種のはロゲンランプから白色 LED に変更し、低消費電力、長寿命、高速応答などを実現している。

2) 3種類の入射角度に対応した8分割リング照明

8分割リング照明は、垂直落射照明では捉えられないエッジ検出に有効で、セラミック基板、プリント基板などの測定に使用される。

VMZ-H3030のType1, 2, 3の光学ヘッドに搭載される8分割リング照明は、光源には白色LEDを使用し、測定面に対する入射角度を、前機種種の37°、78°に55°を追加し、3種類に設定可能としている (Fig. 7)。

Fig. 8 に垂直落射照明条件の画像を、Fig. 9 にリング照明条件で入射角を切り替えた場合の画像を示す。リング照明条件の入射角55°の場合、被測定物の凸部の下側のエッジが検出できていることが分かる。

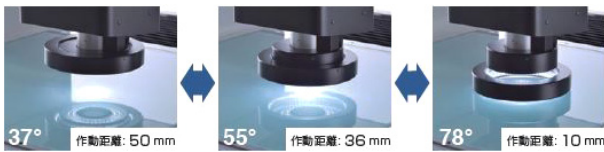


Fig. 7 View of the 8 segments ring illumination²⁾

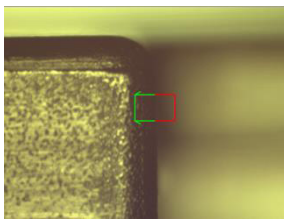


Fig. 8 Image of sample under the vertical episcopic illumination conditions

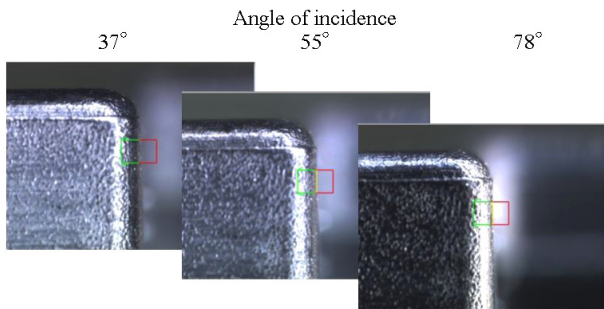


Fig. 9 Images of sample under the 8 segments ring illumination conditions

(3) 薄い透明体の検出を可能としたレーザー AF

VMZ-H3030では、被検物の高さのばらつきによるピントずれを防ぐためのオートフォーカス (AF) 機能として、ナイフエッジ方式の TTL (through the lens) レーザー AF と画像 AF を搭載している。XY ステージを一定速スキャンさせて、合焦位置を目標に Z 軸を追従駆動しながら連続的に高さ測定をする像レーザー AF の機能も搭載している。

Fig. 10 にナイフエッジ方式の TTL レーザー AF の構造を、Fig. 11 にその検出信号の処理を示す。A-B のゼロクロスを検出することにより、表面を検出可能であることを示している。

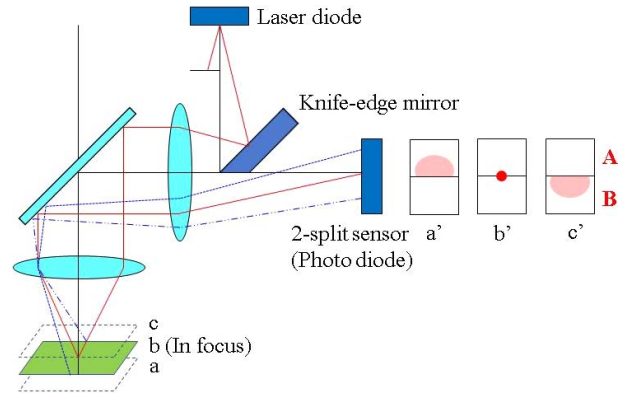


Fig. 10 Principle of the Knife-edge focusing method

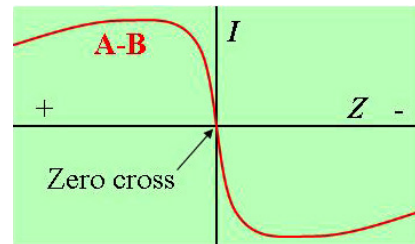


Fig. 11 Relationship between detection signal and Z coordinate

VMZ-H3030は、改良した受光センサーと検出アルゴリズムを搭載することにより、前機種 VMR-H3030では困難であった厚さ 0.1 mm の透明体の厚さ検出を可能としている。

(4) 高精度ステージ

1) 概要

VMZ-H3030は、XY ステージの構造を前機種 VMR-H3030 より継承している。Z ステージは駆動系の見直しにより、最低速を 0.001 mm/s とし、低速での操作性を改善している。

一般的にリニアエンコーダーを用いた測定機のステージではアッペの誤差が、最大の誤差要因となる。ステージの角度誤差を $\angle\theta$ 、測定軸とリニアエンコーダーの距離を L とすると、アッペの誤差は以下の式となる。

$$E_{Abbe} = L \times \angle\theta$$

NEXIV の場合は系統的な誤差を補正するため、ステージの走り誤差 (ピッチング、ヨーイング、ローリング) のロストモーションが $\angle\theta$ となる。

2) V-F ニードルローラーガイド

VMZ-H3030が搭載している V-F (フラット) ニードルローラーガイドは、ステージの下側のフレームに V 溝とフラット面を、上側のフレームに凸 V 形状とフラット面を精密に研削加工し、その間に多数のニードルローラーを配置している。一般的なレールを取り付けるタイプのリニアガイドにあるような、取り付けボルトによるレールの変形等

がないため高精度である。

これによりステージの走り誤差を極力抑え、アッペの誤差の式で $\angle\theta$ を小さくし、アッペの誤差を小さくしている。

Fig. 12 に V-F ニードルローラーガイド部の写真を示す。

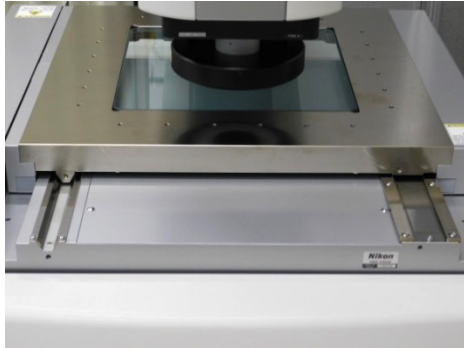


Fig. 12 V-F guide mounted on VMZ-H3030

3) デュアルリニアエンコーダー

X 軸では、リニアエンコーダーを光学ヘッドの光軸の直下の真横に配置している。一方で Y 軸は X 軸の上であり光軸に対して動くため、光軸上にリニアエンコーダーを配置することは不可能である。このため Y 軸ではステージの左右にリニアエンコーダーを配置するデュアルリニアエンコーダーの構造とし、疑似的に光学ヘッドの光軸上にリニアエンコーダーを配置することを実現している。

これにより X 軸 Y 軸とも、ヨーイングに対してアッペの誤差の式で L を小さくし、アッペの誤差を小さくしている。

Fig. 13 に Y 軸のデュアルスケールの原理を示す。

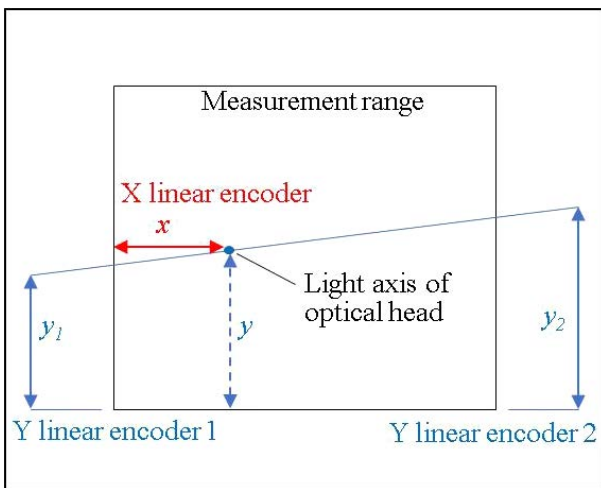


Fig. 13 Principle of Y axis dual linear encoders system

4) 総合精度

VMZ-H3030はISO10360 Part 7に準拠した精度検査を行っている。X 軸 Y 軸の検査には校正された標準尺を使用し、Z 軸の検査には校正されたレーザー測長システムを使用する。Fig. 14 に実際の VMZ-H3030の最大許容単一方向長さ測定誤差 $E_{UX,MPE}$, $E_{UY,MPE}$, $E_{UZ,MPE}$ の検査結果を示す。これは

XYZ 軸各軸方向に 1 軸のみ駆動して測定した場合で、5 つの長さを 3 回ずつ測定した15個の測定値の誤差を点で示し、青色の破線で精度仕様 MPE (maximum permissible error) を示す。点が重なる場合は横にずらして表示している。非常に高い絶対精度と繰返し精度を実現していることが分かる。

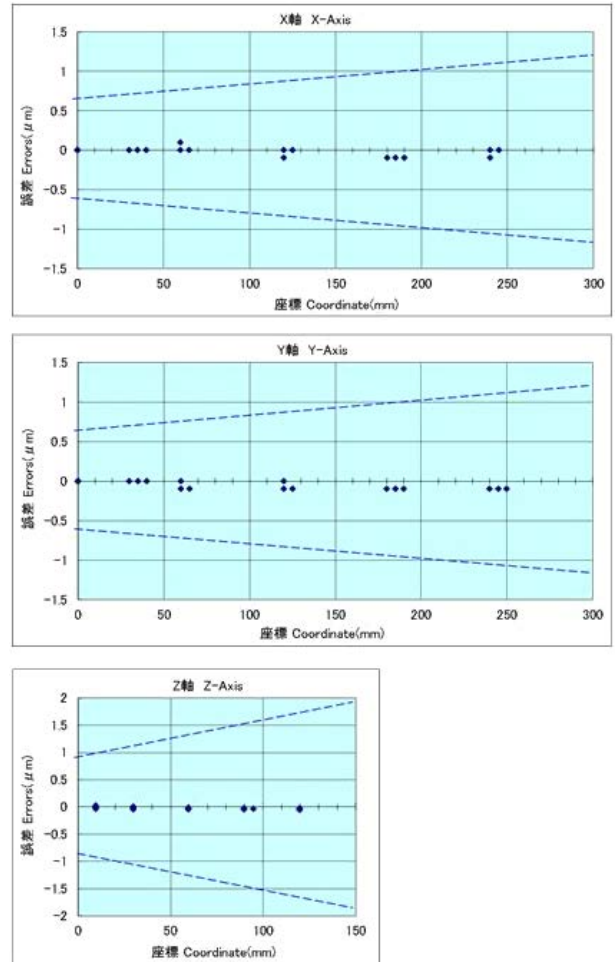


Fig. 14 Inspection certificate of VMZ-H3030

(5) 寸法測定ソフトウェア

1) 概要

VMZ-H3030のアプリケーションソフトウェアは、「寸法測定ソフト NEXIV AutoMeasure」をメインソフトとし、「形状評価ソフト NEXIV Profiler」, 「マップ測定ソフト NEXIV MapMeasure」, 「レポートソフト NEXIV Report」などのオプションソフトで構成される。

NEXIV AutoMeasure は、測定手順を記録したティーチングファイルを作成し、実行することで自動測定を行う。この際、画像処理はサブピクセル処理により、光学系で得た画像のエッジ（明暗の境界）を光学解像力や画素分解能よりも高分解能で検出することができ、高精度な測定が可能となっている。

4 (5) 2) から 4 (5) 4) で新たに追加した機能を説明する。

2) インテリジェントサーチ機能

CNC 画像測定システムにおけるサーチ機能は、あらかじめ登録したパターン形状を探して測定位置を決定し、サンプルの位置ズレや傾きを自動で補正することで、精度よく自動測定することを可能にするものである。

VMZ-H3030では、ニコン独自の画像処理アルゴリズムを用いることで、正確な測定位置を再現し、高精度測定を可能にしている (Fig. 15, Fig. 16)。

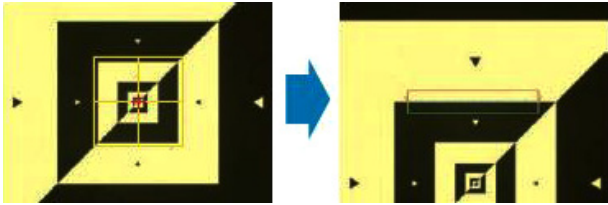


Fig. 15 Automatic detection of workpiece shape by model image²⁾

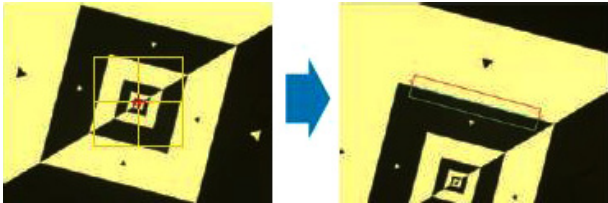


Fig. 16 Detectable even if the position or angle is off (rotation search)²⁾

3) マップ測定

オプションソフトの「マップ測定ソフト NEXIV MapMeasure Pro」では、ウェーハ上やトレイ上のチップ配置を再現したマップパターンを作成することができる。作成したマップパターンを用いることで、任意のチップの測定が容易に可能になり、チップの測定結果を視覚的に確認できる。VMZ-H3030と NEXIV MapMeasure Pro を組み合わせることで、300 mm ウェーハの測定が効率的におこなえる (Fig. 17)。

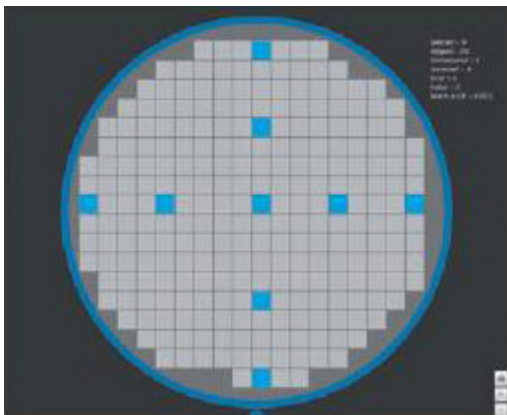


Fig. 17 Map pattern of the wafer²⁾

4) 検査成績書作成プログラム

オプションソフトの「レポートソフト NEXIV Report」は、NEXIVの測定結果から任意の検査成績書を作成することができる。検査成績書のフォーマットには、NEXIVの測定結果データ、測定画像、グラフィックをユーザーが任意の位置に配置することができる。作成したフォーマットを元に、NEXIVの測定終了後に自動で検査成績書が作成される (Fig. 18)。

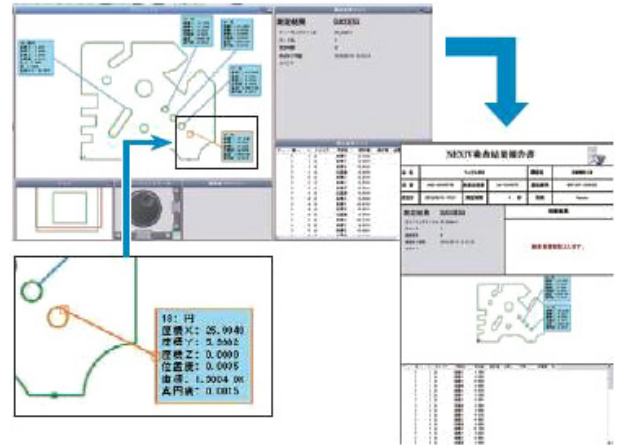


Fig. 18 NEXIV Report²⁾

5 まとめ

NEXIV VMZ-H3030は光学系、寸法測定ソフトウェアが進化し、前機種VMR-H3030より高精度ステージを継承したことにより、高精度な測定が求められる様々な測定対象（金型、各種電子部品、微細パッケージ基板、ウェーハパターン等）の測定要求に応えることができる製品となっている。

CNC 画像測定システムの市場は、電子部品の進化、工場自動化の要求等により今後も拡大が見込まれる。今後も CNC 画像測定システム NEXIV の開発を通じて、様々な産業の発展に貢献していきたい。

参考文献

- 1) https://www.nikon.co.jp/news/2018/0821_nexiv_01.htm, (2019年7月閲覧)
- 2) NEXIV VMZ-R カタログ, ニコンインステック, <http://www.nikon-instruments.jp/jpn/download/brochures/industrial/>, (2019年7月閲覧)



研究開発論文

Research and
Development
Reports

レーザー顕微鏡の解像限界算出のための ダイアグラム法

福武直樹*

Diagram method for resolution limit calculation in laser microscopy

Naoki FUKUTAKE*

顕微鏡の光学分解能は、「光の回折に起因した限界がある」とよく表現される。アッペにより、この回折限界という特性が示され、明視野顕微鏡の結像理論の基礎となった。アッペの結像理論が定式化された当時は、照明された試料からの透過光を用いて像を形成する技術しかなかったが、現在は蛍光を含む様々な光学現象が顕微鏡に使われている。蛍光には回折という概念が存在しないため、当初の顕微鏡には機能していた回折限界の原理は、蛍光顕微鏡には適用できない。実際、蛍光共焦点顕微鏡は回折限界を超えた光学分解能を示す。にもかかわらず、初期の回折限界が未だすべての顕微鏡の評価基準となっていることは驚きに値する。様々な光学現象を用いた顕微鏡の解像限界を比較するために、統一結像理論を構築することは有益である。我々は、量子光学的結像理論を定式化し、そこから光学現象ごとに解像限界が定義されることを導出した。この理論は、アッペの理論を最低次の光学現象を用いるケースとして含み、さらにすべての高次の光学現象を一つの統一式によって表現している。我々は、すべての光学現象をファインマンダイアグラムで描き、ダイアグラムから解像限界を計算する手法を導いた。

In this work, we study the influence of optical processes on the resolution limit of laser microscopes. We formulate rules of resolution limit calculation for all types of laser microscopes that employ a variety of optical processes occurring in a sample. By replacing the field with creation/annihilation operators, we develop a theoretical framework to unify image-forming formulas that cover all interactions between molecules in the sample and the light excitation including the vacuum field. To determine some simple rules for the evaluation of optical resolution, our theoretical framework provides a diagram method that describes linear, nonlinear, coherent, and incoherent optical processes. According to our formulas, the type of optical process decisively influences the resolution limit if no *a priori* information on the sample exists.

Key words 結像理論, 解像限界, 顕微鏡, 光と物質の相互作用, ファインマンダイアグラム
image-forming theory, resolution limit, microscopy, double-sided Feynman diagram, optical process

1 Introduction

In 1873, Ernst Abbe established the modern theory of image formation in optical microscopy and derived the well-known formula for the optical resolution, $d = \lambda/2NA$, which corresponds to a frequency cutoff (resolution limit) of $2NA/\lambda$, where λ is the wavelength of light and NA is the numerical aperture of microscope objective¹. In fact, classical microscopies, such as bright field microscopy², phase contrast microscopy^{3,4}, differential interference microscopy⁵, and dark field microscopy⁶ essentially follow Abbe's theorem. Relatively new microscopy modalities, such as relief contrast microscopy⁷, digital holographic microscopy⁸,

and optical coherence tomography⁹ also obey Abbe's rule.

Recently, laser microscopy systems based on a variety of optical processes have been developed^{10~14}. Although Abbe's definition of resolution limit is still used as the standard, it is relatively unknown that the $2NA/\lambda$ -limit can be applied only to microscopies based on electric susceptibility $\chi^{(1)}$ -derived optical processes, such as linear absorption (LA), transmission, and reflection. Furthermore, considering the three dimensional (3-D) optical resolution in transmission microscopy, it is known that the missing cone exists in the spatial-frequency domain¹⁵, as long as the $\chi^{(1)}$ -derived optical processes are used. When using higher order nonlinear susceptibility $\chi^{(i)}$ -derived optical processes ($i \geq 2$), the reso-

* 研究開発本部 光技術研究所

lution limit may surpass $2NA/\lambda$ and the missing cone can be overcome¹⁶. This implies that the higher order optical processes, even fluorescence, which is a $\chi^{(3)}$ -derived optical process, cannot be dealt with by Abbe's formula. Indeed, the frequency cutoff in fluorescence confocal microscopy is $4NA/\lambda^{15}$.

In this study, we formulated the rules for the resolution limit calculation of all laser microscopes that employ arbitrary optical processes. In our theory, the resolution limit can be calculated by using the double-sided Feynman diagrams describing the time evolution of the density matrix. In nonlinear optics, the Feynman diagram method was originally developed for the classification of optical processes and the calculation of $\chi^{(i)}$ ¹⁷. We extended the applicability of the diagram method to the calculation of the resolution limit. Our theory covers the Abbe's formula as a special case of the lowest order $\chi^{(1)}$ optical process. Linear, nonlinear, coherent, and incoherent optical processes can all be described by the diagram that includes some arrows¹⁸. We show that each arrow corresponds to the 3-D pupil function, following the rule we derived. The transfer function, which we will define as "3-D aperture", can be calculated by connecting all 3-D pupil functions in the diagram with convolutions. According to our theory, without *a priori* information on the sample, the type of optical process involved determines the resolution limit.

2 Optical process: Feynman diagram description

Many types of optical processes can be employed for optical microscopy, as shown in Fig. 1(a). All optical processes, including coherent and incoherent ones, can be described by double-sided Feynman diagrams^{17,18}. As an example, Fig. 1(b) shows the diagrams describing linear fluorescence (FL). In general, optical processes are expressed by simultaneous plural diagrams. For example, in FL, three diagrams exist that contribute to the optical process¹⁸. In an incoherent process such as FL, both the vacuum field and the laser beam are involved. Because solid arrows are generally used

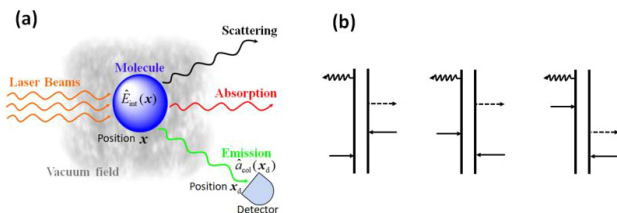


Fig. 1 (a) Schematic of light-matter interaction. (b) Examples of Feynman diagrams (three diagrams for FL)

to represent the excitation field (real photons) in a diagram, we use a dotted arrow to represent the vacuum field. A left-pointing wavy arrow emerging from the ket side (left side) corresponds to the signal field.

In this section, we analyze the fundamental mathematics underlying the physical phenomena by using the quantum-optical notation to deal with all optical processes, including incoherent processes. Before dealing with microscopy, we analyze the simple case where the creation and annihilation of the excitation photons occur in free space with the transition of molecules (including virtual transition), which results in the creation of a signal photon from the molecule and its annihilation at the detection position (see Fig. 1(a)). In a diagram, left- and right-pointing arrows correspond to creation operators $\hat{a}^+(x)$ and annihilation operators $\hat{a}(x)$, respectively, where $x = (x, y, z)$. We establish the drawing rule of the wavy arrow for the signal field, in which the arrow for the signal invariably emerges from the ket side to avoid the redundant addition of diagrams. The wavy arrow corresponds to $\hat{a}_{\text{sig}}^+(x)$ (see Appendix). We define the interaction operator $\hat{E}_{\text{int}}(x)$ as the product of all operators in the diagram of interest and the excitation operator $\hat{E}_{\text{ex}}(x)$, i.e., $\hat{E}_{\text{int}}(x) = \hat{E}_{\text{ex}}(x) \hat{a}_{\text{sig}}^+(x)$. The excitation operator for the i -th order optical process is composed of i creation/annihilation operators.

Some typical diagrams are shown in Fig. 2, where the optical processes are categorized in terms of the order i . Although some optical processes are depicted by simultaneous plural diagrams, one of them is described as a representative diagram for each optical process. Note that the diagrams representing identical optical processes indicate the same optical resolution. The inner dotted line indicates the longitudinal relaxation, which does not influence the optical resolution. In incoherent optical processes, the vacuum field is involved as a local oscillator and one of the excitation fields, while in coherent optical processes only the laser beams are responsible for the excitation. In coherent optical

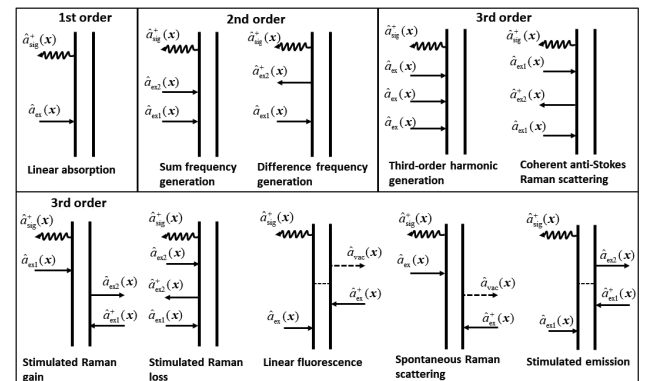


Fig. 2 Typical diagrams for some optical processes

processes, the presence of the local oscillator depends on the type of optical process.

3 Notation system

First, we consider the phenomenon in free space. Fig. 1(a) represents a laser beam incident on a molecular ensemble with nonlinear susceptibility $\chi^{(l)}$, where the light-matter interaction occurs. Then, the molecular ensemble radiates the signal, which propagates to the detector position \mathbf{x}_d , where it is annihilated. We assume the laser beam to be in coherent state $|\alpha\rangle$. We also incorporate the vacuum state around the sample $|0\rangle$ into the formulation (see Appendix). Under the excitation condition $|\alpha\rangle|0\rangle$, the expectation value of the signal created at \mathbf{x} and detected at \mathbf{x}_d can be expressed as $\langle 0|\langle\alpha|\chi^{(l)}\hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x})\hat{a}(\mathbf{x}_d)|\alpha\rangle|0\rangle$. For example, in LA, by using the equation $\hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x}) = \hat{a}_\alpha(\mathbf{x})\hat{a}_0^+(\mathbf{x})$ with $\hat{a}_\alpha(\mathbf{x})$ acting on $|\alpha\rangle$ and $\hat{a}_0^+(\mathbf{x})$ acting on $|0\rangle$, the normalizations $\langle\alpha|\alpha\rangle = 1$ and $\langle 0|0\rangle = 1$, and the ordering rule of operators defined in Appendix (symbol \vdots), the expectation value mentioned above becomes

$$\begin{aligned} & \langle 0|\langle\alpha|\vdots\chi^{(l)}\hat{a}_\alpha(\mathbf{x})\hat{a}_0(\mathbf{x}_d)\hat{a}_0^+(\mathbf{x})\vdots|\alpha\rangle|0\rangle \\ &= \chi^{(l)}\langle\alpha|\hat{a}_\alpha(\mathbf{x})|\alpha\rangle\langle 0|\hat{a}_0(\mathbf{x}_d)\hat{a}_0^+(\mathbf{x})|0\rangle \\ &= \chi^{(l)}\alpha(\mathbf{x})G(\mathbf{x}_d - \mathbf{x}), \end{aligned} \quad (1)$$

where $G(\mathbf{x}_d - \mathbf{x})$ denotes the Green's function for the signal photon propagating from \mathbf{x} to \mathbf{x}_d and $\alpha(\mathbf{x})$ is the complex function obtained from the equation $\hat{a}_\alpha(\mathbf{x})|\alpha\rangle = \alpha(\mathbf{x})|\alpha\rangle$. In Eq. (1), we used suffixes α for the laser and 0 for the vacuum to clarify the state that the operator acts on. In free space without lenses, although $\hat{a}_0(\mathbf{x})$ still corresponds to $\hat{a}_{\text{sig}}(\mathbf{x})$, $\hat{a}_0(\mathbf{x}_d)$ is not equal to $\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d)$:

$$\hat{a}_0^+(\mathbf{x}) = \hat{a}_{\text{sig}}^+(\mathbf{x}) \quad (2)$$

$$\hat{a}_0(\mathbf{x}_d) = \int \hat{a}(\mathbf{f}_d) e^{i2\pi \mathbf{f}_d \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_d. \quad (3)$$

Considering the interaction between the signal field described by Eq. (1), which is generated from the vacuum field, and the excitation laser beam itself, which acts as a local oscillator, the expectation value of the intensity observed by the detector at \mathbf{x}_d is given by

$$\begin{aligned} & \langle 0|\langle\alpha|\vdots|-i\hat{a}_\alpha(\mathbf{x}_d) + \chi^{(l)}\hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x})\hat{a}_0(\mathbf{x}_d)\vdots|\alpha\rangle|0\rangle \\ &\approx \langle 0|\langle\alpha|\{\hat{a}_\alpha^+(\mathbf{x}_d)\hat{a}_\alpha(\mathbf{x}_d) \\ &\quad + i\chi^{(l)}\hat{a}_\alpha^+(\mathbf{x}_d)\hat{a}_\alpha(\mathbf{x})\hat{a}_0(\mathbf{x}_d)\hat{a}_0^+(\mathbf{x}_d) + h.c.\}|\alpha\rangle|0\rangle \\ &= |\alpha(\mathbf{x}_d)|^2 + i\chi^{(l)}\alpha^*(\mathbf{x}_d)\alpha(\mathbf{x})G(\mathbf{x}_d - \mathbf{x}) + c.c. \end{aligned} \quad (4)$$

where the fourth term was neglected and the Gouy phase shift $-i$ added in the vicinity of the focus of the local oscillator was considered.

4 Microscopy model description

We now define the imaging system (laser microscopy) in our model. The laser microscopy is composed of an excitation system that focuses the laser beam onto a sample and a signal-collection system that gathers the signal generated from the sample. A schematic of laser microscopy with the coordinate system is shown in Fig. 3. In the following, we assume a 3-D sample-stage scanning, rather than laser scanning, which, however, does not influence the optical resolution. In laser microscopy, one or two excitation beams are usually employed to generate the signal. The electric field of the signal is emitted from the molecule excited by the electric fields of the excitation beams, and the signal field propagates through the signal-collection system. The signals are acquired point by point with a photodetector to reconstruct the 3-D image.

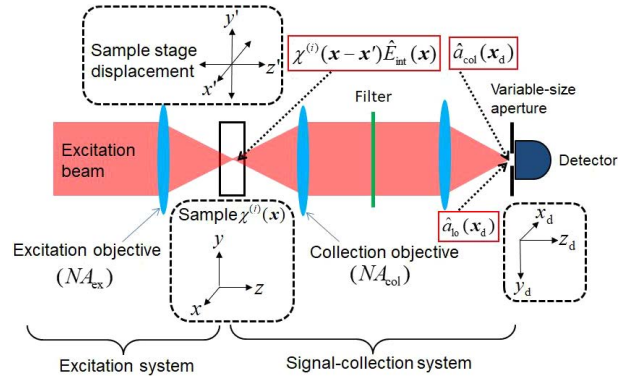


Fig. 3 Schematic of laser microscopy with coordinate systems

For simplicity, the first Born approximation is applied to understand the true nature of the optical resolution. In this approximation, multiple scattering and depletion of the beam are neglected, which usually holds true for nearly transparent samples, such as biological specimens. If multiple scattering and depletion are intense, the image acquired will be deformed to some extent. We assume that both the excitation and signal-collection systems are 1-X magnification systems, which does not change the essence of the image-forming properties. In our model, the scalar diffraction theory is employed. The linear or nonlinear susceptibility distribution $\chi^{(l)}(x, y, z)$ in the sample acts as an object in the imaging system. The excitation electric field induces the polarization, which emits the signal electric field.

5 Quantum image-forming theory

The interaction operator $\hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x})$ is the product of all operators in the diagram of interest corresponding to the excita-

tion fields (laser, vacuum, etc.) and the signal field. In Appendix, the creation $\hat{a}^+(\mathbf{x})$ and annihilation $\hat{a}(\mathbf{x})$ operators for the excitation and signal fields in real space, respectively, are found from the inverse Fourier transform of the product of the 3-D pupil function, $P(f)$, and the operators in wave-number space, $\hat{a}^+(f)$ or $\hat{a}(f)$. When the sample-stage displacement $\mathbf{x}' = (x', y', z')$ is zero, the operator for the polarization distribution in the sample formed by the excitation objective is expressed by $\chi^{(i)} \hat{E}_{\text{ex}}(\mathbf{x})$, where we presume that the electric permittivity ε_0 is unity: $\varepsilon_0 = 1$. As mentioned above, $\hat{E}_{\text{ex}}(\mathbf{x})$ is the operator composed of the product of the operators in the diagram of interest except for $\hat{a}_{\text{sig}}^+(\mathbf{x})$. The expectation value of the amplitude of the signal generated at \mathbf{x} in the sample and detected at \mathbf{x}_d is represented by

$$\begin{aligned} & \langle 0 |_{\text{ex}} \langle \alpha | \chi^{(1)} : \hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x}) \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) : | \alpha \rangle_{\text{ex}} | 0 \rangle \\ &= \langle 0 |_{\text{ex}} \langle \alpha | \chi^{(1)} : \hat{E}_{\text{ex}}(\mathbf{x}) : \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) \hat{a}_{\text{sig}}^+(\mathbf{x}) : | \alpha \rangle_{\text{ex}} | 0 \rangle, \end{aligned} \quad (5)$$

where all operators appearing in the diagram and $\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d)$ are defined in Appendix; the excitation state $|\alpha\rangle_{\text{ex}}$ is also defined in Appendix. The signal emitted from a single point \mathbf{x} in the sample forms the electric field distribution, i.e., the amplitude spread function (ASF), at the detection position \mathbf{x}_d :

$$ASF_{\text{col}}(\mathbf{x}_d - \mathbf{x}) = \langle 0 | \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) \hat{a}_{\text{sig}}^+(\mathbf{x}) | 0 \rangle. \quad (6)$$

Integrating Eq. (5) over the object space, the total amplitude of the signal at \mathbf{x}_d becomes

$$\langle 0 |_{\text{ex}} \langle \alpha | \iiint \chi^{(1)}(\mathbf{x}) : \hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x}) \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) : d^3x | \alpha \rangle_{\text{ex}} | 0 \rangle. \quad (7)$$

In addition to the signal, we need to consider the local oscillator forming the electric-field distribution in the detecting space. For coherent optical processes, one of the excitation laser beams becomes the local oscillator that forms the electric field distribution through the excitation and signal-collection systems. For incoherent optical processes, the vacuum field around the sample acts as a local oscillator reaching the detecting space through the signal-collection system. Considering the interaction between the signal field and the local oscillator, the intensity observed at the detecting point \mathbf{x}_d is given by

$$\begin{aligned} & \langle 0 |_{\text{ex}} \langle \alpha | : -i\hat{a}_{\text{lo}}(\mathbf{x}_d) + \iiint \chi^{(i)}(\mathbf{x}) \hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x}) \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) d^3x : \\ & \quad | \alpha \rangle_{\text{ex}} | 0 \rangle, \end{aligned} \quad (8)$$

where the operator for the local oscillator $\hat{a}_{\text{lo}}(\mathbf{x}_d)$ is introduced and the Gouy phase shift of $-i$ for the local oscillator is considered. The operator $\hat{a}_{\text{lo}}(\mathbf{x}_d)$ becomes $\hat{a}_{\text{lo}(l)}(\mathbf{x}_d)$ acting on $|\alpha\rangle_{\text{ex}}$ or $\hat{a}_{\text{lo}(v)}(\mathbf{x}_d)$ acting on $|0\rangle$ depending on the optical process. Note that, while some of the coherent optical processes are not involved in the local oscillator, which is the

vacuum field, in this case, the contribution of the local oscillator inevitably vanishes because of the formulas $\hat{a}_{\text{lo}(v)}(\mathbf{x}_d) | 0 \rangle = 0$ and $\langle 0 | \hat{a}_{\text{lo}(v)}(\mathbf{x}_d) = 0$.

Taking into account the sample-stage displacement \mathbf{x}' , we rewrite Eq. (8) as

$$\langle 0 |_{\text{ex}} \langle \alpha | : -i\hat{a}_{\text{lo}}(\mathbf{x}_d) + \iiint \chi^{(i)}(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x}) \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) d^3x : | \alpha \rangle_{\text{ex}} | 0 \rangle. \quad (9)$$

To discuss the resolution limit, we consider confocal microscopy, which has the largest frequency cutoff derived from a specific optical process. The image intensity acquired by confocal microscopes can be expressed as

$$\begin{aligned} I(\mathbf{x}') &= \\ & \langle 0 |_{\text{ex}} \langle \alpha | : -i\hat{a}_{\text{lo}}(\mathbf{0}) + \iiint \chi^{(i)}(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \hat{E}_{\text{int}}(\mathbf{x}) \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{0}) d^3x : \\ & \quad | \alpha \rangle_{\text{ex}} | 0 \rangle, \end{aligned} \quad (10)$$

where $\mathbf{0}$ means $\mathbf{x}_d = (0, 0, 0)$, indicating the detection position.

6 Image-forming formulas for each optical process

We give some examples of the image-forming formulas for confocal microscopy with a variety of optical processes. We start with Eq. (10) for all optical processes, including linear, nonlinear, coherent, and incoherent ones.

(1) Coherent optical process

In coherent optical processes, the presence of local oscillators depends on the optical process. For example, in LA, stimulated Raman gain (SRG), stimulated Raman loss (SRL), and stimulated emission (SE), the local oscillator and signal interfere at the detecting position. By contrast, in sum frequency generation (SFG), difference frequency generation (DFG), and third-order harmonic generation (THG), the signal does not interfere with the excitation laser beam because the latter can be blocked with a filter by using the wavelength difference. In coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS), two signals, namely the CARS and four wave mixing (often referred to as non-resonant back ground), interfere, causing the non-resonant background to act as a local oscillator.

For coherent optical processes with local oscillators, Eq. (10) becomes

$$\begin{aligned} I_{C(0)}(\mathbf{x}') &= |\alpha_{\text{lo}(l)} h_{\text{lo}(l)}(\mathbf{0})|^2 \\ & \quad + i\alpha_{\text{lo}(l)}^* h_{\text{lo}(l)}^*(\mathbf{0}) \iiint \chi^{(i)}(\mathbf{x} - \mathbf{x}') E_{\text{ex}}(\mathbf{x}) h_{\text{col}}(-\mathbf{x}) d^3x \\ & \quad + c.c., \end{aligned} \quad (11)$$

where the equations $\langle 0 | \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{0}) \hat{a}_{\text{sig}}^+(\mathbf{x}) | 0 \rangle = ASF_{\text{col}}(-\mathbf{x}) \equiv h_{\text{col}}(-\mathbf{x})$, $\hat{a}_{\text{lo}(1)}(\mathbf{0}) | \alpha \rangle_{\text{ex}} = \alpha_{\text{lo}(1)} h_{\text{lo}(1)}(\mathbf{0}) | \alpha \rangle_{\text{ex}}$, $\langle \alpha | \alpha \rangle_{\text{ex}} = 1$, and $\langle 0 | 0 \rangle = 1$ were considered and the fourth term was neglected; the scalar function $E_{\text{ex}}(\mathbf{x}) = {}_{\text{ex}} \langle \alpha | : \hat{E}_{\text{ex}}(\mathbf{x}) : | \alpha \rangle_{\text{ex}}$ indicates the product of i ASFs formed by the excitation beams. The ASF of the collection system $ASF_{\text{col}}(\mathbf{x}) \equiv h_{\text{col}}(\mathbf{x})$ includes information on the signal wavelength and the NA of the signal-collection system. Note that $ASF_{\text{lo}(1)}(\mathbf{0}) \equiv h_{\text{lo}(1)}(\mathbf{0})$ includes the contributions of the NA of both the excitation and collection systems and the excitation wavelength. Because the first term in Eq. (11) is a constant, the second term determines the resolution limit. We refer to the function $E_{\text{ex}}(\mathbf{x}) h_{\text{col}}(-\mathbf{x}) \equiv h_{\text{t}}(-\mathbf{x})$ as the ASF of the total microscope system and its Fourier transform corresponds to the 3-D aperture. In this case, the 3-D aperture is often referred to as the weak-object transfer function (WOTF)¹⁹. The complex constants α_{ex1} , α_{ex2} , etc. correspond to the laser power amplitude, and $h_{\text{ex1}}(\mathbf{x})$, $h_{\text{ex2}}(\mathbf{x})$, etc. include the information on the excitation wavelength and the NA of the excitation system.

For coherent optical processes without local oscillators, Eq. (10) becomes

$$I_{\text{C}}(\mathbf{x}') = \left| \iiint \chi^{(i)}(\mathbf{x} - \mathbf{x}') E_{\text{ex}}(\mathbf{x}) h_{\text{col}}(-\mathbf{x}) d^3 \mathbf{x} \right|^2, \quad (12)$$

where the first term $\langle 0 | \hat{a}_{\text{lo}(v)}(\mathbf{0}) \hat{a}_{\text{lo}(v)}^+(\mathbf{x}) | 0 \rangle$, which cannot be observed, was neglected; the second and third terms vanish because the numbers of the creation and annihilation operators acting on $|0\rangle$ are different, and only the fourth term remains. In Eq. (12), we use the equation $\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{0}) \hat{a}_{\text{col}}^+(\mathbf{0}) = \hat{a}_{\text{col}}^+(\mathbf{0}) \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{0}) + C$ (const.) originating from the commutation relation $[\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{0}), \hat{a}_{\text{col}}^+(\mathbf{0})] = \int |P_{\text{col}}(\mathbf{f}_d)|^2 d^3 \mathbf{f}_d$ (see Appendix), which results in the part $C \langle 0 | \hat{a}_{\text{sig}}(\mathbf{x}_2) \hat{a}_{\text{sig}}^+(\mathbf{x}_1) | 0 \rangle$ vanishing because the Green's function $\langle 0 | \hat{a}_{\text{sig}}(\mathbf{x}_2) \hat{a}_{\text{sig}}^+(\mathbf{x}_1) | 0 \rangle$ propagating from \mathbf{x}_1 to \mathbf{x}_2 is not related to the physical phenomenon. We also use the relation $|0\rangle \langle 0| = 1$. As mentioned above, the ASF of the total system, ASF_{T} , is represented by $h_{\text{t}}(-\mathbf{x}) \equiv E_{\text{ex}}(\mathbf{x}) h_{\text{col}}(-\mathbf{x})$. Note that grating objects with grating pitch finer than the ASF_{T} cannot be resolved by microscopes using coherent optical processes without local oscillators. Consequently, the ASF_{T} is well-defined indicator of the resolution limit.

(2) Incoherent optical process

In incoherent optical processes such as FL, two-photon excited fluorescence (TPEF), and spontaneous Raman scattering (Ra), the annihilation operator for the vacuum field emerging from the bra side in the diagram $\hat{a}_{\text{vac}}(\mathbf{x})$ (see Appendix) is essential for $\hat{E}_{\text{ex}}(\mathbf{x})$. In incoherent processes, the vacuum field acts as the local oscillator. We define the operator $\hat{E}_{\text{ex}(0)}(\mathbf{x})$ as the product of all operators in the dia-

gram excluding $\hat{a}_{\text{vac}}(\mathbf{x})$, i.e., $\hat{E}_{\text{ex}}(\mathbf{x}) = \hat{E}_{\text{ex}(0)}(\mathbf{x}) \hat{a}_{\text{vac}}(\mathbf{x})$. For an incoherent optical process, Eq. (10) reduces to the well-known image-forming formula:

$$I_{\text{IC}}(\mathbf{x}') = \langle 0 | \hat{a}_{\text{lo}(v)}(\mathbf{0}) \hat{a}_{\text{lo}(v)}^+(\mathbf{x}) | 0 \rangle - 2 \iiint \text{Im} \{ \chi^{(i)}(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \} | ASF_{\text{ex}(0)}(\mathbf{x}) |^2 | h_{\text{col}}(-\mathbf{x}) |^2 d^3 \mathbf{x}. \quad (13)$$

In Eq. (13), the scalar function $E_{\text{ex}}(\mathbf{x}) = {}_{\text{ex}} \langle \alpha | : \hat{E}_{\text{ex}(0)}(\mathbf{x}) : | \alpha \rangle_{\text{ex}}$ is introduced; the relation $E_{\text{ex}(0)}(\mathbf{x}) = | ASF_{\text{ex}(0)}(\mathbf{x}) |^2$ is used because $\hat{E}_{\text{ex}(0)}(\mathbf{x})$ is inevitably composed of the same number of $\hat{a}_{\text{ex}}(\mathbf{x})$ and $\hat{a}_{\text{ex}}^+(\mathbf{x})$ in incoherent optical processes; and the commutation relation $[\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{0}), \hat{a}_{\text{lo}(v)}^+(\mathbf{0})] = \int V^*(\mathbf{f}_d) | P_{\text{col}}(\mathbf{f}_d) |^2 d^3 \mathbf{f}_d = 0$ (see Appendix) and the formula $|0\rangle \langle 0| = 1$ are utilized. Note that $\text{Im} \{ \chi^{(i)}(\mathbf{x}) \}$ is a negative function. Because the vacuum field is never observed, the first term can be omitted. The point spread function of the total system involving an incoherent optical process is $| ASF_{\text{ex}(0)}(\mathbf{x}) |^2 | h_{\text{col}}(-\mathbf{x}) |^2 \equiv h_{\text{t}}(-\mathbf{x})$.

7 Redefinition of the resolution limit

In our theory, all optical processes, including linear, nonlinear, coherent, and incoherent ones, can be dealt with considering the same framework. For coherent processes, only the real field is applied as the excitation field, while for incoherent processes, one of the excitation fields is the vacuum field.

To evaluate the resolution limit of all microscopy modalities, we define the 3-D aperture $A(\mathbf{f})$ as the Fourier transform of the ASF of the total system ASF_{T} represented by $h_{\text{t}}(-\mathbf{x})$. The physical significance of the 3-D aperture is the rate of Fourier components in the object, acquired through the microscope system. In microscopy with a local oscillator, the 3-D aperture is derived from the Fourier transform of the second term (one of the cross terms) of Eq. (10), as $\widetilde{\chi^{(i)}}(\mathbf{f}) A(\mathbf{f})$; in this case, the Fourier transform of the third term is merely the complex conjugate of the Fourier transform of the second term, which means that the third term does not contain additional information. In microscopy without local oscillators, only the fourth term remains, and its Fourier transform is proportional to the autocorrelation of $\widetilde{\chi^{(i)}}(\mathbf{f}) A(\mathbf{f})$. Furthermore, because no local oscillator is present, the optical transfer function (OTF) cannot be defined, resulting in some image deformation. Because the spatial frequency outside the 3-D aperture can never be acquired, the 3-D aperture itself is the most appropriate criteria to obtain the resolution limit.

While for incoherent processes the OTF can always be defined, for coherent processes, it can be defined only if the local oscillator exists. However, the 3-D aperture can be

defined even in the absence of a local oscillator. For microscopy with the local oscillator, two types of the OTFs are defined, i.e., ones for the real and imaginary parts of $\chi^{(i)}(\mathbf{x})$. By taking into account the second and third terms in Eq. (10), the OTF for the real part of $\chi^{(i)}(\mathbf{x})$ becomes $OTF_r(f) = iA(f) - iA^*(-f)$. Similarly, the OTF for the imaginary part can be expressed as $OTF_i(f) = -A(f) - A^*(-f)^{19}$. Although $\chi^{(i)}(\mathbf{x})$ is generally a complex function, in most cases $\chi^{(i)}(\mathbf{x})$ is either the real function or the pure imaginary function. In this case, $OTF_r(f)$ and $OTF_i(f)$ become well-defined and useful concepts. However, even when the OTF is not defined, the 3-D aperture is still the best indicator for the resolution limit, because the information outside the 3-D aperture cannot be acquired.

8 Rules of diagram method

As described above, in all optical processes, including incoherent and coherent, regardless of the presence or absence of the local oscillator, the 3-D aperture can be expressed by the Fourier transform of $h_i(-\mathbf{x})$. The expressions for the coherent and incoherent optical processes can be unified using the diagram method. From the Fourier transform, we obtain the rule that the 3-D aperture of confocal microscopy with a certain optical process can be calculated by convolving all 3-D pupil functions that correspond to the arrows in the diagram, following the correspondence table below²⁰⁾²¹⁾. Note that, in the table, we rewrite $P_{\text{col}}(f) \delta_r^*(|f| - f_{\text{sig}})$ as $P_{\text{col}}(f)$, which has delta-function characteristic in the radial direction.

Table 1 Correspondence between pupil functions and the arrows in the diagrams

	Excitation	Excitation	Vacuum	Signal
arrow	\longrightarrow	\longleftarrow	\dashrightarrow	\rightsquigarrow
Pupil function	$P_{\text{ex}}(-f)$	$P_{\text{ex}}^*(f)$	$P_{\text{col}}^*(-f)$	$P_{\text{col}}(f)$

All optical processes can be described by the diagrams, which were originally developed to classify and count the right amount of interactions and estimate the amplitude and phase of the nonlinear susceptibility in the interaction of interest. We discovered one more application of the diagrams, i.e., calculating the 3-D aperture of microscopes that employ the optical process described by the diagram, where each arrow corresponds to a 3-D pupil function: the 3-D aperture can be computed by connecting all 3-D pupil functions in a diagram with convolution. The frequency cutoff of the 3-D aperture defined above determines the resolution

limit of the microscope. As long as the optical process of interest is employed, the resolution limit cannot surpass the frequency cutoff determined by the optical process, regardless of how well the system is devised. We can prove the following theorem: "If there is no *a priori* information on an object in far-field microscopy, the resolution limit determined by optical process cannot be surpassed, no matter how well the microscopy is devised."

9 Results and discussion

As stated above, the maximum possible resolution limit is determined by the type of optical process employed. For illustration, Fig. 4 shows the calculation results of the 3-D aperture for CARS, SRL, SRG, and THG microscopy²⁰⁾²¹⁾. With identical excitation wavelengths, the resolution limits of SRL and SRG microscopy are the same, while that of CARS microscopy is higher. The 3-D aperture of THG microscopy exhibits peculiar properties, whereby the value of the origin in the spatial frequency domain is zero, resulting in the disappearance of the uniform part from the image.

According to our theory, the upper limit of the frequency cutoff determined by the optical process cannot be surpassed. Although the optical resolution may be different for different microscopy modalities, the maximal frequency cutoff is the same if the same optical process is employed. The modality with the maximal frequency cutoff is confocal microscopy. The frequency cutoff of its 3-D aperture deter-

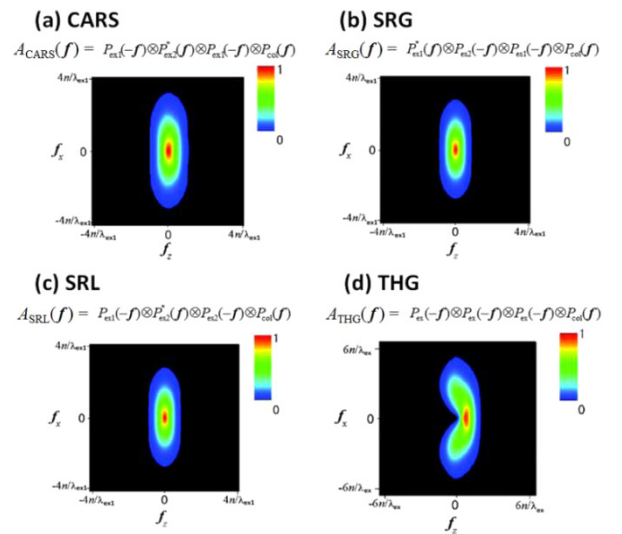


Fig. 4 Calculated 3-D apertures for (a) CARS, (b) SRG, (c) SRL, and (d) THG. n is the average refractive index in the sample. The NAs of both excitation and signal-collection objectives are 0.9 (dry). For CARS, SRG, and SRL, the vibrational frequency ($1/\lambda_{\text{ex1}} - 1/\lambda_{\text{ex2}}$) is assumed to be 2850 cm^{-1} .

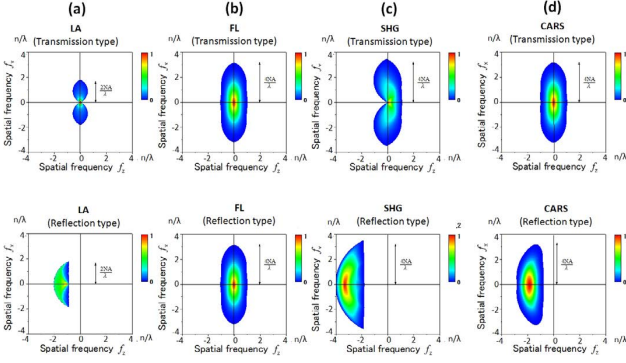


Fig. 5 Calculated 3-D apertures for (a) LA, (b) FL, (c) SHG, and (d) CARS. The upper and lower rows are for transmission and reflection types, respectively.

mines the upper limit by the optical process of interest. While each optical process possesses its own inherent upper limit, the NA and wavelength also influence the resolution. Only spatial frequencies within the 3-D aperture can be imaged. Fig. 5 shows the calculated 3-D apertures of confocal microscopy in transmission and reflection modes employing LA, FL, second-order harmonic generation (SHG), and CARS. In reflection mode, although the OTF does not exist (no local oscillator), the 3-D aperture can be defined. In Fig. 5, the NAs of both excitation and signal-collection objectives are assumed to be 1.2 (water immersion), and λ (800 nm) represents the excitation wavelength. In CARS, where two excitation beams (pump and Stokes) are used, we assume that λ is the pump wavelength (800 nm) and the vibrational frequency is $2,850 \text{ cm}^{-1}$, which means that the Stokes and CARS wavelengths are 1,036 nm and 651 nm, respectively. For simplicity, in FL, we assume that the fluorescence wavelength is the same as the excitation wavelength.

Next, we consider the OTFs of SRL and CARS microscopy. In the previous section, we defined the OTFs of the real and imaginary parts of $\chi^{(3)}$ as $\text{OTF}_r(f) = iA(f) - iA^*(-f)$ and $\text{OTF}_i(f) = -A(f) - A^*(-f)$, respectively. This holds true for SRL because the local oscillator is the pump beam itself, which causes a Gouy phase shift of $-i$ in the vicinity of the focus of the excitation beam in the sample. In CARS, however, the non-resonant background, whose $\chi^{(3)}$ is a positive real number, acts as the local oscillator. The constant before the local oscillator becomes unity in CARS because the non-resonant background is generated from the sample with an initial phase of zero. Here, the non-resonant background is assumed to be spectrally flat and have homogeneous intensity over the sample. In this case, the OTF of CARS microscopy changes as follows: $\text{OTF}_r(f) = A(f) + A^*(-f)$ and $\text{OTF}_i(f) = iA(f) - iA^*(-f)$. If $A(f) = A^*(-f)$, $\text{OTF}_r(f)$ in SRL and

$\text{OTF}_i(f)$ in CARS vanish, but if $A(f) \neq A^*(-f)$, they remain. Consequently, in SRL under the condition $A(f) \neq A^*(-f)$, the real part of $\chi^{(3)}$, which also contains cross phase modulation (XPM, an optical process), appears in the image. Similarly, in CARS under the condition $A(f) \neq A^*(-f)$, the imaginary part of $\chi^{(3)}$ is observed.

We now consider nonconfocal microscopy, which is normally used to obtain a high signal intensity. Although in nonconfocal microscopy the detector is normally placed at the plane conjugate to the pupil of the collection objective, we consider the microscopy in which the detector is placed at the image plane conjugate to the sample plane. Note that, in nonconfocal microscopy, the image does not change regardless of the detector position. Therefore, to simplify the equation, we calculate the intensity value at a certain sample-stage displacement (x', y', z) by three-dimensionally integrating the signal intensity in the detection space. The image intensity acquired by nonconfocal microscopy is proportional to¹⁶⁾²⁰⁾

$$\begin{aligned} I(x') \propto & \iiint |cE_{lo}(x_d) + \iiint \chi_{\text{CRS}}^{(3)}(x-x') [E_{\text{ex}}^3(x)] h_{\text{col}}(x_d-x) d^3x|^2 d^3x_d \\ & \approx \iiint |E_{lo}(x_d)|^2 d^3x_d \\ & + c^* E_{lo}^* \iiint \chi_{\text{CRS}}^{(3)}(x-x') [E_{\text{ex}}^3(x)] h_{\text{col}}(-x) d^3x + c.c., \end{aligned} \quad (14)$$

where $E_{lo}(x_d)$ is the local oscillator, c is $-i$ for SRL and unity for CARS, and $[E_{\text{ex}}^3(x)]$ represents the excitation field including the pump and Stokes beams. In Eq. (14), the fourth term is neglected and the relation $\iiint E_{lo}^*(x_d) h_{\text{col}}(x_d-x) d^3x_d \approx E_{lo}^* h_{\text{col}}(-x)$ was used, assuming that $E_{lo}(x_d) \approx E_{lo} h_{\text{col}}(x_d)$ if $\text{NA}_{\text{ex}} \geq \text{NA}_{\text{col}}$. The first term in Eq. (14) is a constant, which vanishes with lock-in detection in SRL, and can be eliminated on the computer in CARS. The cross terms (second and third terms) form an image.

We now consider the influence of NA on the OTF in CARS and SRL microscopy. By considering the excitation fields $E_p(x) E_s^*(x) E_p(x)$ in CARS and $E_p(x) E_s^*(x) E_s(x)$ in SRL, we analyze the key factor $h_t(-x) = [E_{\text{ex}}^3(x)] h_{\text{col}}(-x)$ that determines the optical resolution, where $E_p(x)$ and $E_s(x)$ are the electric field distribution in the sample for the pump and Stokes beams, respectively. Note that $[E_{\text{ex}}^3(x)]$ is formed by the excitation system, while $h_{\text{col}}(-x)$ is formed by the signal-collection system. In other words, the Fourier transforms of $E_p(x)$ and $E_s(x)$, i.e., $P_p(f)$ and $P_s(f)$, are the spherical-shell shaped pupil functions of the excitation system, determined by the wavelength and NA, while $h_{\text{col}}(-x)$ is the Fourier transform of the pupil function of the signal-collection system $P_{\text{col}}(f)$. Moreover, note that the radius of $P_{\text{col}}(f)$ of SRL differs from that of CARS. The 3-D aperture $A(f)$, i.e., the Fourier transform of $h_t(-x)$, is calculated by convolving the

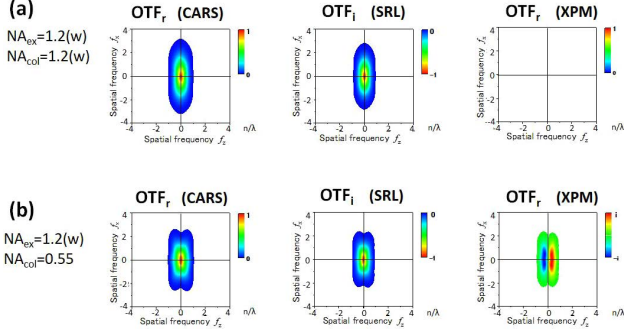


Fig. 6 OTF for CARS, SRL, and XPM. n is the average refractive index in the sample. The wavelengths of the pump and Stokes beams are 800 and 1036 nm, respectively. The vibrational frequency is assumed to be 2850 cm^{-1} . (a) $\text{NA}_{\text{ex}} = 1.2$, $\text{NA}_{\text{col}} = 1.2$. (b) $\text{NA}_{\text{ex}} = 1.2$, $\text{NA}_{\text{col}} = 0.55$.

four pupil functions: $P_p(-f) \otimes P_s^*(f) \otimes P_s(-f) \otimes P_{\text{col}}(f)$ for SRL and $P_p(-f) \otimes P_s^*(f) \otimes P_p(-f) \otimes P_{\text{col}}(f)$ for CARS. Therefore, if $\text{NA}_{\text{ex}} \geq \text{NA}_{\text{col}}$, the 3-D aperture $A(f)$ becomes asymmetric, i.e., $A(f) \neq A^*(-f)$, resulting in the appearance of XPM in SRL microscopy images. On the other hand, if $\text{NA}_{\text{ex}} = \text{NA}_{\text{col}}$ (or even $\text{NA}_{\text{ex}} \leq \text{NA}_{\text{col}}$), the XPM disappears from the image. Note that, if the three focal points (excitation system for the pump beam, excitation system for the Stokes beam, and signal-collection system) do not coincide with one another in the sample, XPM emerges even in the case of $\text{NA}_{\text{ex}} = \text{NA}_{\text{col}}$.

Fig. 6 shows the NA dependency of the OTF in CARS and SRL microscopy, where we assume that, in SRL microscopy, the wavelengths of the pump and Stokes beams are tuned to a full-resonant vibrational level, and in CARS microscopy, they are slightly detuned to observe $\text{Re}\{\chi_{\text{CARS}}^{(3)}\}$. Under the same excitation conditions, CARS microscopy exhibits a slightly higher optical resolution than SRL microscopy owing to the difference in the signal wavelength. In SRL microscopy, if $\text{NA}_{\text{ex}} \geq \text{NA}_{\text{col}}$, the OTF of the XPM appears, which is usually undesired. Because the XPM point spread function, calculated by Fourier transforming the OTF, becomes an odd function in the z -direction, the XPM image seems a differential image with respect to z .

10 Conclusion

We have applied the Feynman diagram technique to calculate the laser microscopy resolution limit. This method allows the description of linear, nonlinear, coherent, and incoherent interactions. By performing the calculations, simple rules for the evaluation of 3-D apertures were derived. The 3-D aperture can be calculated by connecting

the 3-D pupil functions corresponding to each arrow in a diagram with convolution. Our theory implies that, without *a priori* information on the sample, the type of optical process determines the resolution limit.

11 Appendix

The plane wave of a laser beam can be assumed to be in a coherent state with the frequency $f = (f_x, f_y, f_z)$

$$|\alpha\rangle_{\text{ex}} = \prod_{f \in P_{\text{ex}}(f)} |\alpha\rangle_f, \quad (\text{A1})$$

where α is a complex number and $|n\rangle_f$ is the number state for the plane wave with frequency f (wavenumber $k = 2\pi f$). Because the excitation laser beam is focused onto the sample by the excitation objective, the corresponding excitation state is represented by the direct product of all modes restricted by the NA and wavelength:

$$|\alpha\rangle_f = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle_f, \quad (\text{A2})$$

where P_{ex} represents the 3-D pupil function for the excitation objective. In coherent optical processes, we consider only the coherent states for laser beams. If two different laser beams (ex1 and ex2) are employed for the excitation, the state representing the excitation condition becomes $|\alpha\rangle_{\text{ex1}} |\alpha\rangle_{\text{ex2}}$.

For incoherent optical processes, we incorporate the vacuum state $|0\rangle$ into the formulation as one of the excitation lights. For this purpose, we consider the direct product of the coherent state and vacuum state $|\alpha\rangle_{\text{ex}} |0\rangle$ as the excitation condition. The vacuum state $|0\rangle$ contains all modes $|0\rangle_f$ with frequencies f :

$$|0\rangle = \prod_f |0\rangle_f. \quad (\text{A3})$$

This vacuum state exists around the sample. Note that the contribution of $|0\rangle_f$ in $|\alpha\rangle_f$ is negligible because of the normal order product for the operator, which will be explained later.

We introduce the basic idea of the annihilation and creation operators in real space, $\hat{a}(x)$ and $\hat{a}^+(x)$, using the 3-D pupil function $P(f)$:

$$\hat{a}(x) = \int P(f) \hat{a}(f) e^{i2\pi f \cdot x} d^3 f, \quad (\text{A4})$$

$$\hat{a}^+(x) = \int P^*(f) \hat{a}^+(f) e^{-i2\pi f \cdot x} d^3 f, \quad (\text{A5})$$

where $\hat{a}(f)$ and $\hat{a}^+(f)$ are the annihilation and creation operators in the wavenumber domain, respectively. Using this underlying concept, we can define the annihilation operators in real space for the excitation laser field $\hat{a}_{\text{ex}}(x)$, the vacuum field around the sample $\hat{a}_{\text{vac}}(x)$, the local oscillator field derived from the vacuum field $\hat{a}_{\text{lo(v)}}(x)$, the local oscillator field due to the excitation laser field $\hat{a}_{\text{lo(l)}}(x)$, the

signal field emitted from the sample $\hat{a}_{\text{sig}}(\mathbf{x})$, and the signal field collected into the detector $\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x})$ as

$$\begin{aligned}\hat{a}_{\text{ex}}(\mathbf{x}) &= \int P_{\text{ex}}(\mathbf{f}) \hat{a}(\mathbf{f}) e^{i2\pi \mathbf{f} \cdot \mathbf{x}} d^3 \mathbf{f}, \\ \hat{a}_{\text{vac}}(\mathbf{x}) &= \int V(\mathbf{f}) \delta(|\mathbf{f}| - f_{\text{sig}}) \hat{a}(\mathbf{f}) e^{i2\pi \mathbf{f} \cdot \mathbf{x}} d^3 \mathbf{f}, \\ \hat{a}_{\text{lo(v)}}(\mathbf{x}_d) &= \int V(\mathbf{f}_d) P_{\text{col}}(\mathbf{f}_d) \hat{a}(\mathbf{f}_d) e^{i2\pi \mathbf{f}_d \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_d, \\ \hat{a}_{\text{lo(0)}}(\mathbf{x}_d) &= \int P_{\text{ex}}(\mathbf{f}_d) P_{\text{col}}(\mathbf{f}_d) \hat{a}(\mathbf{f}_d) e^{i2\pi \mathbf{f}_d \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_d, \\ \hat{a}_{\text{sig}}(\mathbf{x}) &= \int \delta_+(\mathbf{f}) \delta(|\mathbf{f}| - f_{\text{sig}}) \hat{a}(\mathbf{f}) e^{i2\pi \mathbf{f} \cdot \mathbf{x}} d^3 \mathbf{f}, \\ \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) &= \int P_{\text{col}}(\mathbf{f}_d) \hat{a}(\mathbf{f}_d) e^{i2\pi \mathbf{f}_d \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_d,\end{aligned}\quad (\text{A6})$$

with

$$\begin{aligned}P_{\text{ex}}(f_x, f_y, f_z) &= P_{\text{ex}}^{(2)}(f_x, f_y) P_{\text{ex}}^{(3)}(f_x, f_y, f_z), \\ \delta_+(\mathbf{f}) &= \delta(|\mathbf{f}| - f_{\text{sig}}) + \frac{1}{i\pi(|\mathbf{f}| - f_{\text{sig}})},\end{aligned}\quad (\text{A7})$$

where $P_{\text{ex}}(\mathbf{f})$ is the 3-D pupil function for the excitation system expressed by the product of the 2-D pupil function for the excitation system $P_{\text{ex}}^{(2)}(f_x, f_y)$ (including laser beam profile) and the spherical shell truncated by NA $P_{\text{ex}}^{(3)}(f_x, f_y, f_z)$, which has delta-function characteristics in the radial direction. $V(\mathbf{f})$ represents the complex random function whose modulus is one, $P_{\text{col}}(\mathbf{f})$ is the 3-D pupil function for the signal-collection system, which is the partial sphere with the modulus of one, and f_{sig} is the modulus of the wavenumber for the signal field. Note that f_{sig} takes into account the refractive index of the sample. The information on the aberration is included in the pupil functions.

We now establish the operators ordering. The operators $\hat{a}_{\text{ex}}(\mathbf{x})$ and $\hat{a}_{\text{lo(0)}}(\mathbf{x}_d)$ act on $|\alpha\rangle_{\text{ex}}$, and the operators $\hat{a}_{\text{vac}}(\mathbf{x})$, $\hat{a}_{\text{lo(v)}}(\mathbf{x}_d)$, $\hat{a}_{\text{sig}}(\mathbf{x})$, and $\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d)$ act on $|0\rangle$. For the operator ordering, we introduce the symbol \vdots . In the area between the symbols \vdots , the order of the operators is rearranged as follows:

- Rule for the operators acting on $|\alpha\rangle_{\text{ex}}$

Normal ordered product: creation operators are placed to the left of the annihilation operators in the product.

- Rule for the operators acting on $|0\rangle$

Anti-normal ordered product: annihilation operators are placed to the left of creation operators in the product.

The special ordered product defined above means that the vacuum field cannot be observed, except when considering the propagator represented as the vacuum expectation value, such as $\langle 0 | \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) \hat{a}_{\text{sig}}^\dagger(\mathbf{x}) | 0 \rangle$. Note that we ignore the vacuum expectation value $\langle 0 | \hat{a}_{\text{lo(v)}}(\mathbf{x}_d) \hat{a}_{\text{lo(v)}}^\dagger(\mathbf{x}_d) | 0 \rangle$, which cannot be observed in practical experiments.

To unify the framework for coherent and incoherent optical processes, the classical field is replaced by the operator. Then, the operator acts on the bra or ket describing the excitation condition. Because the vacuum field inevitably exists around the sample, we always utilize both the coherent state for the laser and the vacuum state as the excitation

condition, such as $|\alpha\rangle_{\text{ex}} | 0 \rangle$. For example, using the relation $\hat{a}_{\text{ex}}(\mathbf{f}) |\alpha\rangle_{\text{ex}} = \alpha |\alpha\rangle_{\text{ex}}$, the calculation is as follows:

$$\begin{aligned}\hat{a}_{\text{ex}}(\mathbf{x}) |\alpha\rangle_{\text{ex}} &= \int P_{\text{ex}}(\mathbf{f}) \hat{a}(\mathbf{f}) e^{i2\pi \mathbf{f} \cdot \mathbf{x}} d^3 \mathbf{f} |\alpha\rangle_{\text{ex}} \\ &= \int P_{\text{ex}}(\mathbf{f}) \alpha e^{i2\pi \mathbf{f} \cdot \mathbf{x}} d^3 \mathbf{f} |\alpha\rangle_{\text{ex}} \\ &= \alpha ASF_{\text{ex}}(\mathbf{x}) |\alpha\rangle_{\text{ex}},\end{aligned}\quad (\text{A8})$$

where $ASF_{\text{ex}}(\mathbf{x})$ is the ASF formed by the excitation laser beam onto the sample through the excitation objective. The calculation related to the vacuum field is as follows:

$$\begin{aligned}\langle 0 | \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) \hat{a}_{\text{sig}}^\dagger(\mathbf{x}) | 0 \rangle &= \int P_{\text{col}}(\mathbf{f}) \delta_+(\mathbf{f}) e^{i2\pi \mathbf{f} \cdot (\mathbf{x}_d - \mathbf{x})} d^3 \mathbf{f} \\ &= ASF_{\text{col}}(\mathbf{x}_d - \mathbf{x}),\end{aligned}\quad (\text{A9})$$

$$\begin{aligned}\langle 0 | \hat{a}_{\text{vac}}(\mathbf{x}) \hat{a}_{\text{lo(v)}}^\dagger(\mathbf{x}_d) | 0 \rangle &= \left\{ \int |V(\mathbf{f})|^2 P_{\text{col}}(\mathbf{f}) \delta(|\mathbf{f}| - f_{\text{sig}}) e^{i2\pi \mathbf{f} \cdot (\mathbf{x}_d - \mathbf{x})} d^3 \mathbf{f} \right\}^* \\ &= \{ ASF_{\text{col}}(\mathbf{x}_d - \mathbf{x}) \}^*,\end{aligned}\quad (\text{A10})$$

$$\begin{aligned}\langle 0 | \hat{a}_{\text{sig}}(\mathbf{x}) \hat{a}_{\text{col}}^\dagger(\mathbf{x}_d) | 0 \rangle &= \left\{ \langle 0 | \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) \hat{a}_{\text{sig}}^\dagger(\mathbf{x}) | 0 \rangle \right\}^* \\ &= \{ ASF_{\text{col}}(\mathbf{x}_d - \mathbf{x}) \}^*,\end{aligned}\quad (\text{A11})$$

where $ASF_{\text{col}}(\mathbf{x}_d)$ is the ASF formed by the signal field onto the detector through the signal-collection objective. Eq. (A9) represents the propagator for the photon that is created at \mathbf{x} and annihilated at \mathbf{x}_d . In Eqs. (A10) and (A11), the left-hand side, which appears to be the light propagation from \mathbf{x}_d to \mathbf{x} , physically indicates that the light expressed by the complex conjugate propagates from \mathbf{x} to \mathbf{x}_d .

For the convenience of formulas transformation and simplification, we calculate the commutation relation between the annihilation and creation operators in real space:

$$\begin{aligned}[\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d), \hat{a}_{\text{col}}^\dagger(\mathbf{x}_d)] &= \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) \hat{a}_{\text{col}}^\dagger(\mathbf{x}_d) - \hat{a}_{\text{col}}^\dagger(\mathbf{x}_d) \hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d) \\ &= \int P_{\text{col}}(\mathbf{f}_1) \hat{a}(\mathbf{f}_1) e^{i2\pi \mathbf{f}_1 \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_1 \int P_{\text{col}}^*(\mathbf{f}_2) \hat{a}^\dagger(\mathbf{f}_2) e^{-i2\pi \mathbf{f}_2 \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_2 \\ &\quad - \int P_{\text{col}}^*(\mathbf{f}_2) \hat{a}^\dagger(\mathbf{f}_2) e^{-i2\pi \mathbf{f}_2 \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_2 \int P_{\text{col}}(\mathbf{f}_1) \hat{a}(\mathbf{f}_1) e^{i2\pi \mathbf{f}_1 \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_1 \\ &= \iint P_{\text{col}}(\mathbf{f}_1) P_{\text{col}}^*(\mathbf{f}_2) \{ \hat{a}(\mathbf{f}_1) \hat{a}^\dagger(\mathbf{f}_2) - \hat{a}^\dagger(\mathbf{f}_2) \hat{a}(\mathbf{f}_1) \} e^{i2\pi(\mathbf{f}_1 - \mathbf{f}_2) \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_1 d^3 \mathbf{f}_2 \\ &= \iint P_{\text{col}}(\mathbf{f}_1) P_{\text{col}}^*(\mathbf{f}_2) [\hat{a}(\mathbf{f}_1), \hat{a}^\dagger(\mathbf{f}_2)] e^{i2\pi(\mathbf{f}_1 - \mathbf{f}_2) \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_1 d^3 \mathbf{f}_2 \\ &= \iint P_{\text{col}}(\mathbf{f}_1) P_{\text{col}}^*(\mathbf{f}_2) \delta(\mathbf{f}_1 - \mathbf{f}_2) e^{i2\pi(\mathbf{f}_1 - \mathbf{f}_2) \cdot \mathbf{x}_d} d^3 \mathbf{f}_1 d^3 \mathbf{f}_2 \\ &= |P_{\text{col}}(\mathbf{f})|^2 d^3 \mathbf{f},\end{aligned}\quad (\text{A12})$$

where the commutation relation in frequency domain $[\hat{a}(\mathbf{f}_1), \hat{a}^\dagger(\mathbf{f}_2)] = \delta(\mathbf{f}_1 - \mathbf{f}_2)$ is used. Likewise, we obtain

$$\begin{aligned}[\hat{a}_{\text{col}}(\mathbf{x}_d), \hat{a}_{\text{lo(v)}}^\dagger(\mathbf{x}_d)] &= \int V^*(\mathbf{f}_d) |P_{\text{col}}(\mathbf{f}_d)|^2 d^3 \mathbf{f}_d \\ &= 0,\end{aligned}\quad (\text{A13})$$

where the random phase nature of $V^*(\mathbf{f}_d)$ is used.

References

- 1) E. Abbe: *Archiv für Mikroskopische Anatomie* (in German). Bonn Germany, Verlag von Max Cohen & Sohn 9 (1), 413-468 (1873).
- 2) A. Köhler: *Zeitschrift für wissenschaftliche Mikroskopie und*

- für Mikroskopische Technik*, **10** (4), 433-440 (1893).
- 3) F. Zernike: *Physica*, **9** (7), 686-698 (1942).
 - 4) F. Zernike: *Physica*, **9** (10), 974-986 (1942).
 - 5) G. Nomarski: *J. Phys. Radium*, **16**, 9 (1955).
 - 6) R. Zsigmondy: *John Wiley & Sons*, 1st ed. (1914).
 - 7) R. Hoffman and L. Gross: *Applied Optics Microscope*, **14**, 1169-1176 (1975).
 - 8) T. Zhang and I. Yamaguchi: *Optics Letters*, **23** (15), 1221-1223 (1998).
 - 9) D. Huang, E. A. Swanson, C. P. Lin, J. S. Schuman, W. G. Stinson, W. Chang, M. R. Hee, T. Flotte, K. Gregory, C. A. Puliafito and J. G. Fujimoto: *Science*, **254**, 1178-1181 (1991).
 - 10) W. Denk, J. H. Strickler and W. W. Webb: *Science*, **248**, 73-76 (1990).
 - 11) I. Freund and M. Deutsch: *Opt. Lett.*, **11**, 94-96 (1986).
 - 12) Y. Barad, H. Eisenberg, M. Horowitz and Y. Silberberg: *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 922-924 (1997).
 - 13) A. Zumbusch, G. R. Holtom and X. S. Xie: *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 4142-4145 (1999).
 - 14) W. Freudiger, W. Min, B. G. Saar, S. Lu, G. R. Holtom, C. He, J. C. Tsai, J. X. Kang and X. S. Xie: *Science*, **322**, 1857-1861 (2008).
 - 15) C. J. R. Sheppard and C. J. Cogswell: *Journal of Microscopy*, **159** (2), 179-194 (1990).
 - 16) N. Fukutake: *J. Opt. Soc. Am. B*, **30**, 2665-2675 (2013).
 - 17) T. K. Yee and T. K. Gustafson: *Phys. Rev. A*, **18**, 1597 (1978).
 - 18) S. Mukamel: [*Principle of Nonlinear Optical Spectroscopy*], Oxford University Press, New York, (1995).
 - 19) C. J. R. Sheppard and X. Q. Mao: *J. Opt. Soc. Am. A*, **6**, 1260-1269 (1989).
 - 20) N. Fukutake: [*MICROSCOPY AND ANALYSIS*], INTECH (Chapter 1), Rijeka (Croatia), (2016).
 - 21) N. Fukutake: *SPIE proceedings*, 10500 (2018).

繰り返し誘導遷移を利用した超解像非線形蛍光顕微鏡

嶽 文宏*, 林 世莉*

Super-resolution nonlinear fluorescence microscopy using repetitive stimulated transition

Fumihiko DAKE* and Seri HAYASHI*

光の回折限界を超えた超解像蛍光顕微鏡はバイオイメージングにおいて不可欠なツールとなっている。種々の手法が提案実証されており、その多くが光と物質の相互作用を効果的に活用している。我々は、繰り返し誘導遷移 (REST, Repetitive stimulated transition) という物理現象を提起し、これを利用した超解像非線形蛍光顕微鏡を提案実証している。REST 顕微鏡では、2色のレーザー光が誘起する誘導吸収 (励起) と誘導放出を複数回経て生じる非線形蛍光をロックイン検出することで画像を取得する。非線形蛍光の信号発生領域が入射光の点像強度分布関数の多重積となるため、超解像効果が得られる。蛍光ビーズ・生物試料イメージングの結果は、提案手法による分解能向上効果を明瞭に示している。本稿では REST 顕微鏡について総説する。まず始めに、蛍光と非線形蛍光に関する現象論的モデルを用いて、REST の種類と特長について述べる。次に、これまでの REST 顕微鏡の原理確認実験結果について紹介する。最後に、非線形蛍光の考察と今後の展望について述べる。

In developing super-resolution fluorescence microscopy, light-matter interactions allow the diffraction barrier to be broken. Super-resolution nonlinear fluorescence microscopy is presented in this study using a unique light-matter interaction named as repetitive stimulated transition (REST), caused by two-color laser beams. The resulting nonlinear fluorescence, which undergoes the aforementioned REST processes, is detectable as a signal via the lock-in technique. The signal is produced by the multiplicative combination of incident beams leading to an improvement of the three-dimensional optical resolution. Imaging results of fluorescent beads indicate that REST microscopy has a superior optical resolution compared to conventional laser-scanning fluorescence microscopy. Biological imaging results verify the acceptable feasibility of REST microscopy for practical use. In this review article, the phenomenological model to describe the mechanisms and characteristics of REST processes is presented. Then, the recent advancement of REST microscopy using two distinctive REST processes implemented with pulsed and continuous-wave lasers respectively, is described. Finally, a general outlook of nonlinear fluorescence microscopy is given.

Key words 蛍光顕微鏡, 非線形顕微鏡, 超解像, 誘導吸収, 誘導放出
fluorescence microscopy, nonlinear microscopy, super-resolution, stimulated absorption, stimulated emission

1 Introduction

Fluorescence microscopy is an indispensable tool in the field of biology and is widely used for a variety of biological imaging applications¹⁾. However, the optical resolution remains limited to about half of the wavelength on account of the diffraction limit²⁾. To surpass the diffraction barrier, several super-resolution techniques utilizing the nonlinearity of various light-matter interactions have been applied^{3)~12)}.

Recently, super-resolving nonlinear fluorescence (NF) microscopy that employs repetitive stimulated transition

(REST) processes caused by two-color laser beams¹³⁾¹⁴⁾ was proposed. The NF is produced by the multiplicative combination of both incident beams, resulting in the improvement of the three-dimensional optical resolution — theoretically to an unlimited extent. There are two REST processes, their main difference being the origin of the saturation effect¹³⁾¹⁴⁾. Both methods are similar, but have different physical phenomena leading to offbeat signal properties, such as optical resolution, quantum-limited sensitivity, and tolerance to photodamage.

In this review article, first the phenomenological model to

* 研究開発本部 光技術研究所

describe the mechanisms and characteristics of NF including REST processes is presented. Then, the recent advancement of REST microscopy using different REST processes implemented with pulsed and continuous-wave (CW) lasers respectively, is described. Finally, a general outlook over NF microscopy is given.

2 Phenomenological interpretation of REST processes

Figure 1 describes the phenomenological interpretation for linear fluorescence (LF) and NF. The wavelengths of the pump and probe beams overlap the absorption and emission spectra of the fluorescent dye, respectively. Thus the pump beam induces stimulated absorption (SA) and the probe beam induces stimulated emission (SE). In the LF process (Fig. 1(a)), the pump beam induces SA (i.e., excitation), then generates fluorescence. In the lowest NF (LNF) process (Fig. 1(b)), the pump beam excites fluorophores, a few of which are reverted to the ground state by SE from the probe beam. The NF signal is then produced. The detectable NF wavelength is different from the probe wavelength. The LNF microscopy was previously implemented with pulsed lasers⁶⁽⁷⁾ and CW lasers⁸⁽¹⁵⁾. In REST processes (Figs. 1(c) and (d)), a few fluorophores, which were excited by the pump beam and then reverted by the probe beam, are excited again by the pump or probe beam, resulting in the production of higher-order NF signals (i.e., REST signals). These re-excitations are due to the finite lifetime of the high vibrational state within the ground state, after fluorophores are reverted by SE¹⁶⁾. This is generally considered to have a negative effect on Stimulated emission depletion (STED) microscopy since the re-excitation unavoidably disturbs complete fluorescence quenching. Contrastingly, REST microscopy can utilize these re-excitations as the origin of signal production. It appears that REST processes are higher-order nonlinear phenomena compared to the LNF process. REST processes can be interpreted as a part of a saturation effect¹³⁾. The REST process based on the re-excitation caused by the pump beam (Fig. 1(c)) can be interpreted as the saturation effect of SA. On the other hand, the REST process based on the re-excitation caused by the probe beam (Fig. 1(d)) can be interpreted as the saturation effect of SE.

Optical resolutions for the LF and NF processes can be roughly estimated from the phenomenological model. For simplicity, it is assumed that the optical resolution is determined solely by the incident beam, ignoring the pinhole effect¹⁷⁾. The LF signal is proportional to the pump beam;

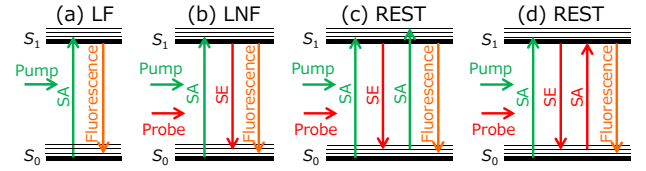


Fig. 1 Phenomenological interpretation for LF and NF processes: (a) LF, (b) LNF, (c) and (d) REST caused by the saturation effects of SA and SE, respectively. S_0 : population of the ground state, S_1 : population of the excited state.

therefore, its resolution is determined by the pump point spread function (PSF). The LNF signal is proportional to the product of the pump and probe beams; therefore, its resolution is determined by the product of both beam PSFs, resulting in a superior resolution to the LF signal^{6)~8)}. In a similar manner, REST signals are proportional to the product of the three beams; therefore, optical resolutions are determined by the product of the three PSFs, resulting in superior resolutions compared to the LF and the LNF signals. The theoretical expectation can be estimated using a resolution scaling factor of $1/\sqrt{i}$ ¹³⁾, where i is the number of associated stimulated transitions. The specific theoretical formulas for both REST processes are described in our previous works¹³⁽¹⁴⁾.

To extract the REST signal from the total fluorescence signal practically, it is necessary to use a lock-in technique. The intensities of the pump and probe beams should be modulated with sinusoidal waves at frequencies of f_1 and f_2 , respectively. The REST signal can be detected with a demodulation frequency of $mf_1 \pm nf_2$ ¹³⁾, where m and n are the numbers of associated stimulated transitions caused by the pump and probe beams, respectively ($m + n = i$).

3 Experimental setup

Figure 2 shows the experimental setup for REST microscopy, the details are described in our previous works¹³⁽¹⁴⁾. Two-color lasers are used for the pump and probe beams. The pump wavelength is set within the absorption spectrum of the fluorescent dyes. The probe wavelength is set within the red tail of the emission maximum. Pulsed and CW lasers are used for the proof-of-concept demonstration of REST processes based on the saturation of SA (Fig. 1(c)) and SE (Fig. 1(d)), respectively. The intensities of the pump and probe beams are temporally modulated by acousto-optic modulators with sinusoidal waves at modulation frequencies of $f_1 = 2$ MHz and $f_2 = 2.7$ MHz. Then, both beams are focused into a sample via an objective lens (Nikon, CFI Plan Apo VC 100X/1.4 Oil) that induces the light-matter interac-

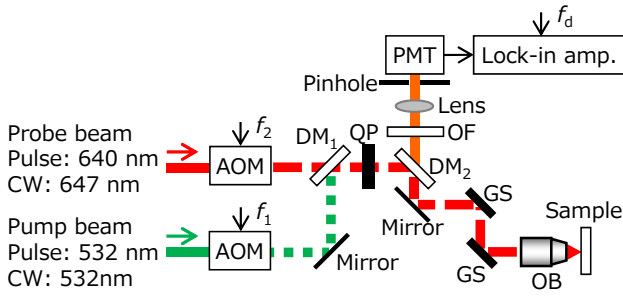


Fig. 2 Experimental setup for REST microscopy. AOM: acousto-optic modulator, DM: dichroic mirror, QP: quarter-wave plate, GS: galvano scanner, OB: objective lens, OF: optical filter, PMT: photomultiplier tube. f_d : demodulation frequency.

tions such as: LF, LNF and REST processes. A backscattering fluorescence is passed through an optical filter (593 ± 23 nm), which removes both pump and probe beams. Fluorescence is focused into a pinhole with a diameter of $30 \mu\text{m}$ (~ 1 airy) and detected with a photomultiplier. The detector photocurrent is then determined by a lock-in amplifier.

4 Demonstration of REST microscopy using the saturation of SA implemented with pulsed lasers

The REST process based on the saturation of SA was applied with two-color picosecond pulsed lasers¹³. Figure 3 shows the experimental results for REST signal detection. A fluorescent solution consisting of ATTO 550 dissolved in water at a concentration of approximately $1 \mu\text{g}/\mu\text{L}$ was employed as a test sample. Figure 3(a) shows the dependence of the lock-in signals on the pump optical power. The LF signal was detected with a demodulation frequency of f_1 , when employing only the pump beam. The REST signal was detected with a demodulation frequency of $2f_1 - f_2$ (1.3 MHz), when employing both the pump and probe beams. The results confirmed that the LF signal was proportional to the 0.9^{th} power of the pump power, in good agreement with the pump power dependence of LF. On the other hand, the results also confirmed that the REST signal was proportional to the 2.1^{th} power of the pump power. This result is also in good agreement with the pump power dependence of the REST process. Figure 3(b) shows the dependence of the lock-in signal on the probe optical power. The REST signal was proportional to the 0.9^{th} power of the probe power. This result was in good agreement with the probe power dependence of the REST process. Therefore, these results confirm that the lock-in signals demodulated with $2f_1 - f_2$ originate from the REST process based on the saturation of SA (Fig.

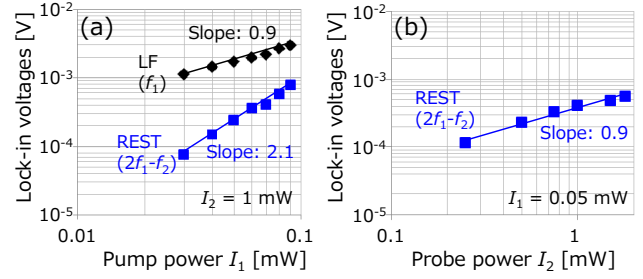


Fig. 3 Experimental results for REST signal detection¹³. (a) Lock-in signals as a function of the pump power. (b) Lock-in signals as a function of the probe power.

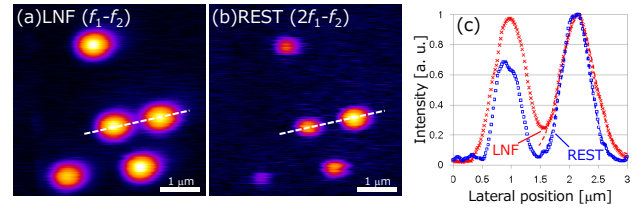


Fig. 4 Imaging results of fluorescent beads with a diameter of 500 nm ¹³. (a) LNF and (b) REST images. $I_1 = 0.1 \text{ mW}$, $I_2 = 1.5 \text{ mW}$. Image acquisition time: 5 s. (c) Line profiles along the white dashed lines indicated in (a, b).

1(c)).

Figure 4 shows the imaging results of fluorescent beads with a diameter of 500 nm . Figures 4(a) and (b) show LNF and REST images, respectively. The LNF and REST signals were detected with demodulation frequencies of $f_1 - f_2$ (0.7 MHz) and $2f_1 - f_2$ (1.3 MHz), respectively. The imaging results showed that the bead diameter in the REST image was narrower than in the LNF image. Figure 4(c) shows line profiles of the images. The intensity of the REST signal between the two beads sharply declined, indicating that the REST signal has a higher resolution than the LNF signal. The full-width at half-maximum (FWHMs) of the bead profiles captured by LNF and REST were 684 nm and 539 nm , respectively. Since the bead diameter was larger than the diffraction-limited resolution, the estimated FWHMs do not directly provide optical resolution. Nevertheless, the experimental results clearly demonstrate the scalability of optical resolution and provide sufficient evidence of resolution improvement using the REST process.

5 Demonstration of REST microscopy using the saturation of SE implemented with CW lasers

The REST process based on the saturation of SE was

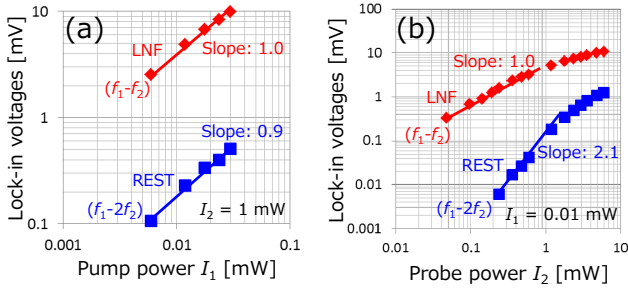


Fig. 5 Experimental results of REST signal detection¹⁴. (a) Lock-in signals as a function of the pump power. (b) Lock-in signals as a function of the probe power.

applied with two-color CW lasers¹⁴. Figure 5 shows the experimental results for REST signal detection. A fluorescent solution (ATTO 550) was used as a sample. LNF and REST signals were detected with demodulation frequencies of $f_1 - f_2$ (0.7 MHz) and $f_1 - 2f_2$ (3.4 MHz), respectively. Figure 5(a) shows the dependence of the lock-in signals on the pump optical power. The LNF and REST signals were proportional to the 1.0th and 0.9th powers of the pump power, respectively. These results were in good agreement with the pump power dependence of the LNF and REST signals. Figure 5(b) shows the dependence of the lock-in signals on the probe optical power. The LNF signal was proportional to the 1.0th power of the probe power. On the other hand, the REST signal was proportional to the 2.1th power of the probe power. Both power properties were in good agreement with the probe power dependence of the LNF and REST signals, respectively. These results are effective evidence that the lock-in signal demodulated with $f_1 - 2f_2$ originates from the REST process based on the saturation of SE (Fig. 1(d)). Under these experimental conditions, the REST signal did not follow the square-root law when the probe power reached several milliwatts (Fig. 5(b)). The saturation of a certain NF signal indicates the generation of higher-order NF signals⁴. It should be noted that the REST signal saturation gives rise to an unavoidable negative effect that worsens the optical resolution, since it three-dimensionally expands the signal generation volume. In this case, it is desirable to detect a higher-order REST signal that can be detected with a demodulation frequency of $f_1 - nf_2$ ($n > 2$).

Figure 6 shows the imaging results of fluorescent beads with a diameter of 200 nm. Figures 6(a) and (b) show the LNF and REST images, respectively. Figure 6(c) shows line profiles of both images. The FWHMs of the bead profiles acquired by the LNF and REST signals were 289 nm and 251 nm, respectively. Because the bead diameter is smaller than the diffraction-limited resolution, the estimated FWHMs become approximately equal to their respective reso-

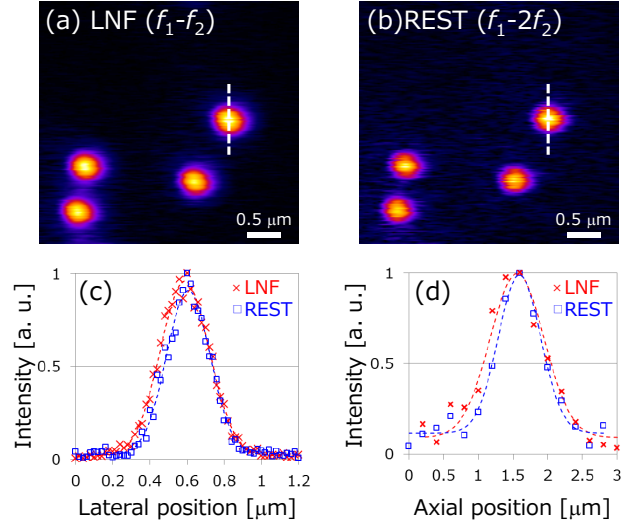


Fig. 6 Imaging results of fluorescent beads with a diameter of 200 nm¹⁴. (a) LNF and (b) REST images. (c) Line profiles along the white dashed lines indicated in (a) and (b). (d) Axial line profiles of the fluorescent beads. Image acquisition time: 1 s. $I_1 = 12 \mu\text{W}$, $I_2 = 2 \text{ mW}$.

lutions. These results demonstrate that the REST signal has a 1.2 times higher lateral resolution than the LNF signal. Figure 6(d) shows axial line profiles of the fluorescent beads. The FWHMs of the bead profiles acquired by the LNF and REST signals were 913 nm and 721 nm, respectively. Therefore, the REST signal has a 1.3 times higher axial resolution than the LNF signal. The theoretical value can be estimated by the resolution scaling factor of $1/\sqrt{i}$ ¹³. The theoretical FWHM ratio of LNF ($i = 2$) to REST ($i = 3$) is calculated as $\sqrt{3/2} = 1.22$. Therefore, it was confirmed that the experimental result was in good agreement with the theoretical expectation.

Figure 7 shows the imaging results of the spheroid sample, where the actin of HT-29 cells was labeled with ATTO 550 dye. Images were captured via a water immersion objective lens (Nikon, CFI Plan Apo VC 60XC/1.2 WI). Figure 7(a) shows the confocal fluorescence (CF) image captured with a demodulation frequency of f_1 while employing solely the pump beam. Figure 7(b) shows the REST image. Figure 7(c) shows line profiles of the images. These results demonstrate that the REST image has a better optical resolution and contrast than the CF image. Imaging results also reveal that even REST microscopy implemented with CW lasers can be sufficient for biological application. Thus, the feasibility of REST microscopy for practical use was verified.

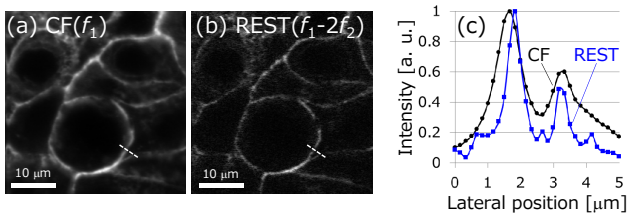


Fig. 7 Imaging results of the spheroid sample¹⁴⁾. (a) CF and (b) REST images. (c) Line profiles along the white dashed lines in (a) and (b). Imaging depth: 10 μm . Image acquisition time: 1 s. $I_1 = 40 \mu\text{W}$, $I_2 = 4 \text{ mW}$.

6 Discussion and Outlook

Both distinctive REST processes (Figs. 1(c) and (d)) caused by the saturation of SA and SE have complementary features. The optical resolution of the former REST signal is superior to that of the latter because of the difference between the pump and probe wavelengths ($\lambda_1 < \lambda_2$). The photodamage caused by the probe beam is potentially less problematic than that caused by the pump beam because the probe beam is intrinsically transparent to the sample. In terms of quantum limit sensitivity, the latter REST signal ($\propto I_1 I_2^2$) is potentially less susceptible to shot noise than the former REST signal ($\propto I_1^2 I_2$). An increase of the pump intensity boosts the LF signal, resulting in a definite increase of the shot noise. On the other hand, the probe beam does not produce the LF signal; an increase of the probe intensity decreases the fluorescence photons due to SE, resulting in a reduction of the shot noise.

Both pulsed and CW lasers were used as light sources for REST microscopy. It is apparent that pulsed lasers are more efficient in generating NF signals than CW lasers. However, the need for a pulsed laser inevitably disturbs the wider use of this method due to the high cost, low robustness, and narrow wavelength selectivity. CW lasers enable REST microscopy in a more practical way. In STED microscopy, equivalent fluorescence quenching can be achieved by both types of lasers — as long as the CW laser power reaches several folds compared to the averaged power of the pulsed laser¹⁸⁾. Thereby, it is expected that the REST image qualities captured by CW and pulsed lasers could be identical. Judging from the fact that photobleaching occurs predominantly from the laser peak intensity¹⁹⁾, CW lasers are potentially less harmful than pulsed lasers. The image acquisition time is virtually irrelevant to the laser type because it is predominantly determined by the lock-in frequencies.

The present optical setup enables both REST signals to be acquired, as well as the conventional LF and LNF signals, via the appropriate setting of the demodulation frequency.

It is desirable to select appropriate NF signals based on the imaging and sample conditions. It should be noted that NF signals can intrinsically retain their sectioning ability without the pinhole due to the nonlinearity⁶⁾²⁰⁾, while the LF signal cannot retain this without the pinhole. The pinhole effect theoretically extends the frequency cutoff in both LF and NF microscopy, and a smaller pinhole is desirable¹⁷⁾. However, too small of a pinhole is problematic for photon detection efficiency in thick sample imaging due to the light deflection or scattering impacts. It is advisable to set an appropriate pinhole size which can achieve balance between image quality and optical resolution.

Fluorescence lifetime imaging (FLIM) is a promising application for NF microscopy. Fluorescence lifetime enables fluorophores with the same emission spectrums, but different lifetimes, to be distinguished and therefore improve the molecular discrimination capacity²¹⁾²²⁾. Fluorescence lifetime essentially depends on the molecular conformation and the manner in which the molecule interacts with its environment; therefore, FLIM can elucidate molecular interactions and dynamics^{23)~26)}. The LNF signal has previously been applicable to FLIM⁶⁾⁷⁾²⁷⁾. The REST signal is also expected to be applicable for FLIM with a higher optical resolution than the LNF signal, which enables visualization of biological interactions on a subcellular scale. Such versatility will be useful for a variety of sample observations.

7 Summary

In this review article, first the mechanisms and characteristics of REST processes with phenomenological interpretation were presented. Then, the application of REST microscopy using saturation effects of SA and SE implemented with pulsed and CW lasers respectively, was described. Finally, a general outlook over NF including REST processes was given. REST microscopy is pursued in order to make it a beneficial approach for the visualization of various biological interactions and dynamics on a subcellular scale.

Acknowledgment. The authors are grateful to Y. Taki, N. Fukutake, and Y. Fujikake of Nikon Corporation for the fruitful discussions and insights.

References

- 1) B. N. G. Giepmans, S. R. Adams, M. H. Ellisman and R. Y. Tsien: *Science*, **312** (2006) 217.
- 2) J. B. Pawley: *Handbook of Biological Confocal Microscopy* (Springer Science + Business Media, 2006).

- 3) B. Hein, K. I. Willig and S. W. Hell: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **105** (2008) 14271.
- 4) K. Fujita, M. Kobayashi, S. Kawano, M. Yamanaka and S. Kawata: *Phys. Rev. Lett.*, **99** (2007) 228105.
- 5) K. Isobe, A. Suda, H. Hashimoto, F. Kannari, H. Kawano, H. Mizuno, A. Miyawaki and K. Midorikawa: *Biomed. Opt. Express*, **1** (2010) 791.
- 6) C. Y. Dong, P. T. C. So, T. French and E. Gratton: *Biophys. J.*, **69** (1995) 2234.
- 7) F. Dake and Y. Taki: *Appl. Opt.*, **57** (2018) 757.
- 8) J. Miyazaki, H. Tsurui, A. Hayashi-Takagi, H. Kasai and T. Kobayashi: *Opt. Express*, **22** (2014) 9024.
- 9) M. G. L. Gustafsson: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **102** (2005) 13081.
- 10) E. H. Rego, L. Shao, J. J. Macklin, L. Winoto, G. A. Johansson, N. K. Hughes, M. W. Davidson and M. G. L. Gustafsson: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **109** (2012) E135.
- 11) F. Dake, S. Nakayama and Y. Taki: *Opt. Rev.*, **22** (2015) 598.
- 12) F. Dake: *Opt. Rev.*, **23** (2016) 587.
- 13) F. Dake, N. Fukutake, S. Hayashi and Y. Taki: *Appl. Phys. Express*, **11** (2018) 012401.
- 14) F. Dake and S. Hayashi: *Opt. Lett.*, **44** (2019) 3402.
- 15) C. Y. Dong, C. Buehler, P. T. C. So, T. French and E. Gratton: *Appl. Opt.*, **40** (2001) 1109.
- 16) M. Leutenegger, C. Eggeling and S. W. Hell: *Opt. Express*, **18** (2010) 26417.
- 17) C. Y. Dong, P. T. C. So, C. Buehler and E. Gratton: *Optik*, **106** (1997) 7.
- 18) K. I. Willig, B. Harke, R. Medda and S. W. Hell: *Nat. Methods*, **4** (2007) 915.
- 19) M. Dyba and S. W. Hell: *Appl. Opt.*, **42** (2003) 5123.
- 20) L. V. Doronina-Amitonova, I. V. Fedotov and A. M. Zheltikov: *Opt. Lett.*, **40** (2015) 725.
- 21) K. Carlsson and A. Liljeborg: *J. Microscopy*, **185** (1997) 37.
- 22) J. Bückers, D. Wildanger, G. Vicidomini, L. Kastrop and S. W. Hell: *Opt. Express*, **19** (2011) 3130.
- 23) M. K. Kuimova, G. Yahioglu, J. A. Levitt and K. Suhling: *J. Am. Chem. Soc.*, **130** (2008) 6672.
- 24) J. R. Lakowicz, H. Szmajcinski, K. Nowaczyk and M. L. Johnson: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **89** (1992) 1271.
- 25) S. Ogikubo, T. Nakabayashi, T. Adachi, M. S. Islam, T. Yoshizawa, M. Kinjo and N. Ohta: *J. Phys. Chem. B*, **115** (2011).
- 26) D. Li, W. Zheng and J. Y. Qu: *Opt. Lett.*, **33** (2008) 2365.
- 27) J. Miyazaki, K. Kawasumi and T. Kobayashi: *Rev. Sci. Instrum.*, **85** (2014) 093703.

超広視界双眼鏡 WX の開発

富田賢典*, 福本 哲*

Development of the super-wide field of view WX binoculars

Katsunori TOMITA* and Satoshi FUKUMOTO*

世界最高峰の双眼鏡の製品化を掲げ、かつてないレベルの広視界と周辺までクリアな像を両立、超高性能な光学系を双眼鏡としての大きさ・重さで実現することを目標とし、2機種の双眼鏡（WX 7×50 IF・WX 10×50 IF）を開発した。それぞれの双眼鏡の見掛視界は、66.6°と76.4°である。

一般的に、上記のような非常に広視界で、且つメガネをかけたままでも視界の隅々まで覗きやすいロングアイレリーフの仕様を満足するように双眼鏡を設計した場合、プリズムや接眼レンズが双眼鏡の幅方向に大型化し、双眼鏡の眼幅の確保が困難であった。本双眼鏡では、プリズムにアップ・ケーニッヒ型を採用し、プリズムが幅方向に大型化することを抑えた。また、新タイプの接眼レンズでパワー配置など最適なバランスを導き出し、接眼レンズの径の増大を防ぎ、眼幅を確保した。さらに、視界の最周辺まで十分に収差を追い込み、超広視界であるにもかかわらず像が平坦でシャープな視界を実現した。

本双眼鏡は2017年6月に発売した。その後、性能を妥協なく追求した製品として、高い評価を得ている。

The purpose of this development is to produce one of the best binoculars in the world. We made two types of binoculars that had unprecedented super-wide field of view (FOV) with sharp images up to the edge by correcting aberrations. The products specifications are 7 x 50 and 10 x 50. Each apparent FOV is 66.6° and 76.4°. Consequently, we achieved target performances and launched these products in 2017. After commercialization, the binoculars are highly regarded for its excellent performance.

Key words 双眼鏡, 超広視界, 接眼レンズ, プリズム
binoculars, super-wide field of view, eyepiece, prism

1 はじめに

今回、10年以上かけて開発を進め、製品化した双眼鏡のWXシリーズを紹介する。ラインアップは2種類あり、実視界が広く、明るい視界が得られるWX 7×50 IFと、見掛視界が広く、開放的で迫力を感じられるWX 10×50 IFである。このシリーズは、これまでにない世界最高峰の双眼鏡を製品化することを目標に掲げ、開発された。天体観察愛好家などの星空を長時間観察したいという要望や、船舶や監視などの業務用、観光地での風景観察といった目的でも、現存する双眼鏡では見え味、視界の広さに満足できないユーザーの要望にも応えられることを狙った。

従来、このような超広視界の双眼鏡の設計を試みた場合、プリズムや接眼レンズといった光学部品の大型化などの問題が生じたため、双眼鏡として成立させるのは困難だった。これらの問題を乗り越えた結果、かつてないレベルの広視界と周辺までクリアな像を両立し、超高性能な光学系を、双眼鏡としての大きさ・重さで実現することを可能にした。

この製品は、弊社の創立100周年となる2017年6月に、発



Fig. 1 本双眼鏡の図

売され、その後、高い性能が評価され、予想を超える売り上げを上げている (Fig. 1)。

2 主な仕様

Table 1 に本双眼鏡の主な仕様を示す。

本製品の特徴である視界の広さを従来の双眼鏡と比較したイメージがFig. 2, Fig. 3 である（視界のイメージはおうし座のV字部分）。

* 光学本部 第一設計部

Table 1 本双眼鏡の主な仕様

	WX 7×50 IF	WX 10×50 IF
倍率	7	10
対物レンズ有効径 [mm]	50	50
実視界 [°]	10.7	9
見掛視界 [°] *1	66.6	76.4
ひとみ径 [mm]	7.1	5
アイレリーフ [mm]	17.7	15.3

*1: ISO14132-1:2002に基づいた見掛視界の表記数値.

7x50 SP WP



実視界 : 7.3°
見掛視界 : 48.1°

WX 7x50 IF



実視界 : 10.7°
見掛視界 : 66.6°

Fig. 2 従来品と WX 7 x 50 IF の視界の広さを比較したイメージ

10x70 SP WP



実視界 : 5.1°
見掛視界 : 48.0°

WX 10x50 IF



実視界 : 9.0°
見掛視界 : 76.4°

Fig. 3 従来品と WX 10 x 50 IF の視界の広さを比較したイメージ

Fig. 2 左側は、弊社で30年以上前に発売され、現在も天文ファンに人気の高い高性能双眼鏡 7×50 SP WP の視界のイメージである。WX 7×50 IF の視界のイメージを右側に並べると 7×50 SP WP と比べて、圧倒的に視界が広いことが分かる。

Fig. 3 左側は、7×50 SP WP と同様に以前から人気の高い高性能双眼鏡 10×70 SP WP の視界のイメージである。WX 10×50 IF の視界のイメージを右側に並べると視界が著しく広がっていることが分かる。

WX シリーズの 2 機種には、それぞれ長所があり、目的に合わせて選択することができる。

WX 7×50 IF は、ひとみ径が 7 mm と大きく、双眼鏡を

通しているにもかかわらず、視界が非常に明るい。そのため星雲などの面積のある淡い天体を、より明るく見る場合に適している。また、7 倍の双眼鏡では他に類を見ないほど視界が広い。

WX 10×50 IF のひとみ径は、WX 7×50 IF よりも小さい 5 mm だが、倍率が高いため夜空のバックグラウンドが暗くなり、恒星などの点光源の天体をより高いコントラストで見ることができる。また、見掛視界が 76.4° と他の双眼鏡と比べて圧倒的に広く、没入感をより楽しむことができる。

両機種ともにアイレリーフは、眼鏡をかけた人でも覗きやすいロングアイレリーフの仕様である。

3 光学設計

一般的に、超広視界で、ロングアイレリーフの仕様を実現するのは難しい。その理由は、プリズムや接眼レンズが双眼鏡の幅方向に大型化し、十分な眼幅調整範囲を確保することが困難であること、また、視界が広いため、最周辺まで像の平坦性を良好に保つことが難しいためである。本双眼鏡では、プリズムにアッペ・ケーニッヒ型を用い、また、新タイプの接眼レンズ¹⁾を設計することにより、眼幅調整範囲を確保し、さらに視界の最周辺まで収差性能を極めて良好に補正することに成功した。以下に、本双眼鏡の開発で特にポイントとなったアッペ・ケーニッヒ型プリズムと新タイプの接眼レンズの説明をする。

(1) アッペ・ケーニッヒ型プリズム

Fig. 4 は本双眼鏡で用いたプリズムの図である。

従来、多くの双眼鏡で用いられるプリズムは、ポロタイプのポロ I 型 (Fig. 5) やダハタイプのシュミット・ベシャン型 (Fig. 6) がある。ポロタイプのメリットは、製造が容易で、コスト面で有利となることだが、デメリットとして対物レンズと接眼レンズを一直線に並べた構成を取ることができず、双眼鏡が幅方向に大きな形状となり、コンパクトな形状にできないことが挙げられる。そのため今回は、ボディの形状が直線的な形にまとめられるダハタイプを採用した。しかし、ダハタイプでは、ダハ角 90 度に対して、



Fig. 4 本双眼鏡で用いたプリズムの図

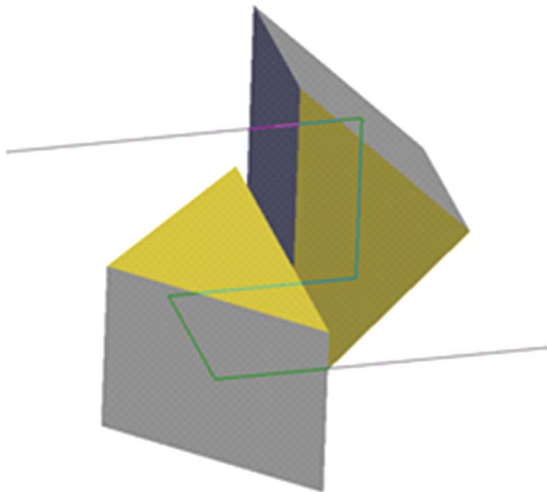


Fig. 5 ポロ I 型

全反射しない面

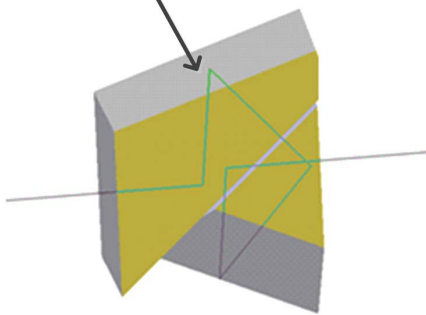


Fig. 6 シュミット・ベシャン型

秒単位の公差が付けられるなど、高い精度が必要となり、製造が難しく、コストも高くなるというデメリットがある。

ダハタイプの中で多用されるシュミット・ベシャン型は、光路を折り畳むため全長の短縮効果が高く双眼鏡を短くできる。しかし、プリズム内の光路長は長くなるため、大口径や広視界の双眼鏡で用いると光束が蹴られやすくなる。そのため、光束を通すには有効径を大きくしてプリズムの幅を大型化する必要がある。大口径や広視界の双眼鏡には不向きである。また、反射面の中で全反射しない面が1面存在し、その面では蒸着面での反射となり光量をロスする。

本双眼鏡は大口径且つ広視界のため、シュミット・ベシャン型を用いると、プリズムが幅方向に大型化する。そこで、ダハタイプでありながら光路長が短いアッペ・ケーニツヒ型を採用した (Fig. 7)。シュミット・ベシャン型とアッペ・ケーニツヒ型の光路長を、プリズムを平行平板に展開して比較したイメージを Fig. 8 に示す。アッペ・ケーニツヒ型は、全長の短縮効果はほぼないが、光路長を短くできることにより、プリズムの有効径を小さくすることが可能で、プリズムが幅方向に大型化することを抑えられ、また、すべての反射面で全反射するので、光量のロスが無い。

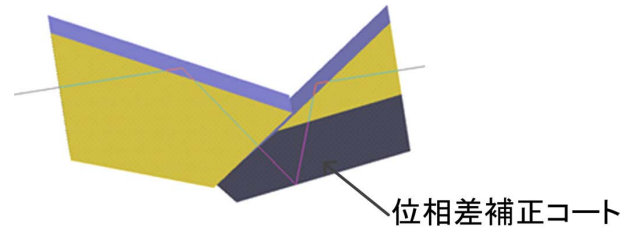


Fig. 7 アッペ・ケーニツヒ型

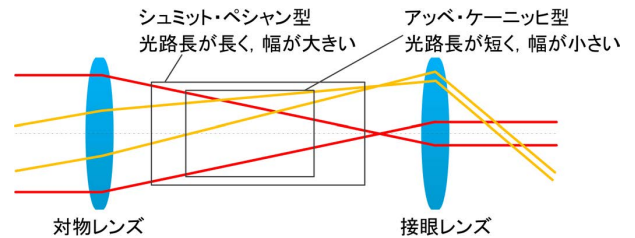


Fig. 8 プリズムを平行平板に展開した場合の光路長の比較

ダハタイプのプリズムでは、光がダハ面で反射する際に、光束がダハの稜線で左右に分断されて、それぞれの偏光状態が異なってしまうという問題が生じる。それにより分解力の低下、コントラストの劣化が起こる。今回用いたプリズムでは、ダハ面に位相差補正コートを施してこの現象を改善している。

(2) 新タイプの接眼レンズ

双眼鏡の光学系は、対物レンズ側は画角が小さく、明るさの影響が支配的で、接眼レンズ側は画角の大きさが支配的となる。今回の双眼鏡は超広視界のため、接眼レンズ側で、画角に対して影響の大きい収差の補正が重要であった。

今回設計する上で多くの制約があったが、特に障壁となった条件の一つに接眼レンズ径がある。双眼鏡の接眼レンズの外径は人間の左右の眼幅以上に大きくすることができない。Fig. 9 で示すように人間の両目の間隔が決まっています。接眼レンズ径を大きくしていくと左右の接眼レンズが干渉してしまう。接眼レンズ径に制約があると、光学設計をする上で次のような問題点が生じてくる。

非常に広視界でなおかつロングアイレリーフの接眼レンズを実現しようとした場合、最大画角の光線の角度が、仕様でほぼ決まっているため、必然的に接眼レンズの径が大きくなる (Fig. 10)。

双眼鏡の光学系で、収差補正やアイレリーフを伸ばすのに優れている接眼レンズのタイプに、中タイプがある (Fig. 11)。中タイプとは、弊社で用いている用語で、一般的ではないが、中間像の前に負のパワーのレンズを配置したタイプである。この負のパワーのレンズを中レンズ、中間像よりも眼に近いレンズを外レンズと呼んでいる。基本的にケプラー型の望遠鏡は、焦点距離が正のパワーのレンズで構成されているために、ベッツパールの補正が難しい。中タイプを用いると、負のパワーのレンズにより、像面の補

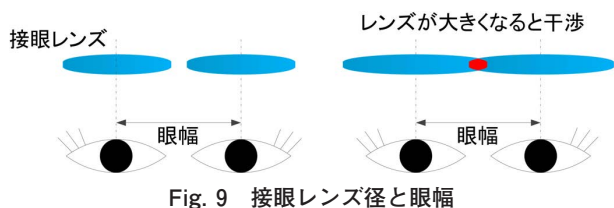


Fig. 9 接眼レンズ径と眼幅

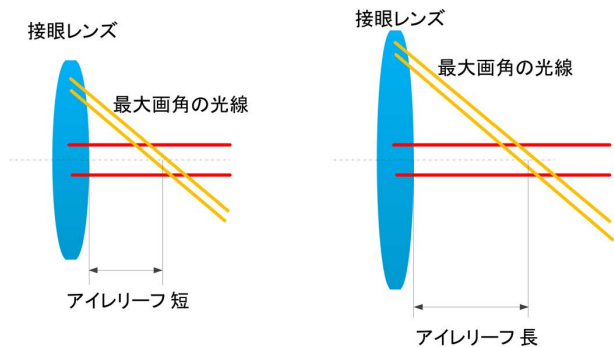


Fig. 10 接眼レンズ径とアイレリーフ

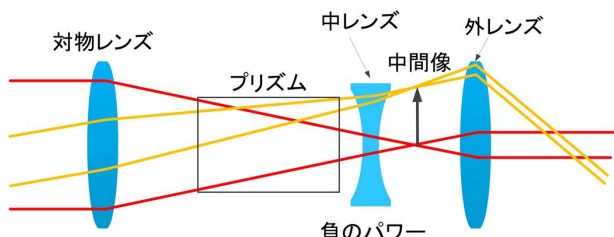


Fig. 11 中タイプの接眼レンズの構成

正に非常に有効に働く。また、中レンズで光線を跳ね上げることで、アイレリーフを伸ばすのに有利である。このタイプは、光線を跳ね上げるにより接眼レンズの径が大きくなってしまふデメリットがある。そのため、中レンズの焦点距離を適切に管理した設計が重要である。

双眼鏡の光学系は、一般的にピネッティングが大きく、周辺光束が非常に細くなっていることが多い。アイポイント位置に眼を置けば全視界が見えるが、周辺光束が細いと眼が動いたときにブラックアウトしやすくなる。特に広視界の双眼鏡の場合、眼が動いた時に周辺がすぐに見えなくなってしまう。そのため、今回の双眼鏡は、周辺光束を可能な限り太く取り込むように設計した。周辺光束を太くするには、接眼レンズ径が大きいと有利だが、上記の通り接眼レンズ径には制約がある。

広視界の双眼鏡では、瞳の球面収差の影響が問題となりやすい。瞳の球面収差により、画角によってアイポイント位置が変わってしまうことで、眼を置く位置によって視界の一部が欠けてしまったり、全視界を欠けることなく見える位置がないといった現象が起こる。Fig. 12 に瞳の球面収差によって視界が欠けてしまう例を示す。Fig. 12 で示すように眼の位置を決めた場合、視界の中心の光線や視界の周辺の光線は眼に入るが、中間の画角の光線は眼に入らず、

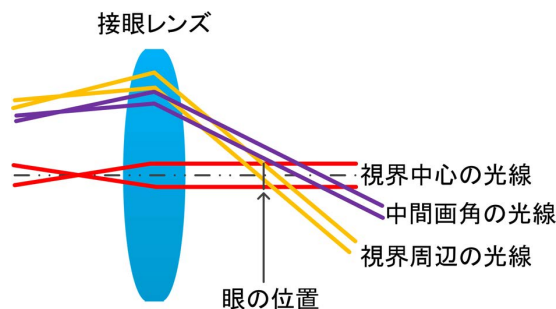


Fig. 12 瞳の球面収差による視界の欠け

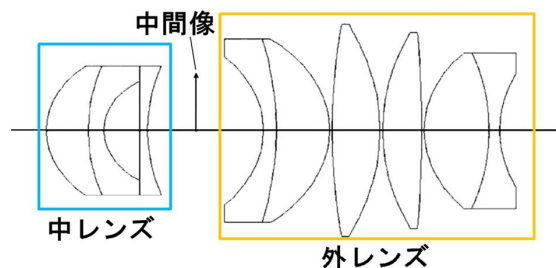


Fig. 13 接眼レンズの構成の例

視界が欠けてしまうことになる。視界の欠け方が隠元豆のように見えることから、隠元豆効果と呼ばれる²⁾。隠元豆効果を防ぐために、設計時には瞳の球面収差の値を確認する必要がある。

その他に、広視界の双眼鏡では、あえて適度な歪曲収差を出して設計するという特徴がある。双眼鏡を左右に振って観察した際に、歪曲収差が小さいと物体が球面上を移動するように不自然に見えてしまう。これにより、観察者に船酔いのような症状が生じる。この現象は視界の広い双眼鏡ほど顕著となるが、適度な糸巻型の歪曲収差を出すことで緩和される。そのため、今回の双眼鏡では、歪曲収差の狙い値を定めて、意図的に歪曲収差を出した設計とした。

設計した接眼レンズの構成の例を Fig. 13 に示す。

中タイプを採用し、中間像の左側に負のパワーのレンズ系を配置した。設計の特徴として、中レンズも外レンズもレンズ枚数の多い構成で、収差補正に有利である。各レンズのパワー配置など最適なバランスを導き出し、接眼レンズの全長を抑えて光軸方向でのプリズムとの干渉を防いでいる。一般的な双眼鏡の中タイプでは、中レンズが単レンズもしくはダブルレット1つのことが多いが、今回は2つに分割することで、強力に像の平坦性に効果を発揮している。中レンズの最も左側の面が、強い凸面の形状をしているが、その凸面で一度光線を下げて、接眼レンズ径を小さくする働きをしている。接眼レンズ径の大型化を抑えることで、十分な眼幅調整範囲を確保した。3つの貼り合せレンズは、色収差の補正に役立っている。曲率の強い凹面を数か所配置することにより、像面の平坦性を補正している。視界の周辺まで十分に収差を追い込み、超広視界であるにもかかわらず、最周辺まで像が平坦でシャープな視界を実現した。

4 光学性能

設計時、光学性能の詳細な評価は、収差図等を確認しながら行っているが、参考までに2次元像シミュレーションの結果を示す (Fig. 14, Fig. 15)。2次元像シミュレーションで基にした画像は、黒の背景に白い丸をランダムに描いたものである。比較のために、従来の双眼鏡と本双眼鏡の視界周辺でのシミュレーション結果を並べた。

Fig. 14 左側は7×50 SP WP, Fig. 15 左側は10×50 SP WPの従来の双眼鏡のシミュレーション結果を示している。どちらも、光学性能は高いが、像が崩れてコントラストが落ちていることがわかる。それに対して、Fig. 14 右側のWX 7×50 IF, Fig. 15 右側のWX 10×50 IFのシミュレーション結果では、視界が圧倒的に広がっているにもかかわらず、周辺での光学性能が明らかによくなっていることが一目瞭然で分かる。

本双眼鏡は、従来の双眼鏡に対して視界の周辺でも、光学収差性能を良好に補正しているため、視界が圧倒的に広がっているにもかかわらず、十分に鮮明な像が得られる。

5 まとめ

かつてないレベルの広視界と周辺までクリアな像を両立、超高性能な光学系を双眼鏡としての大きさ・重さで2機種 of 双眼鏡 (WX 7×50 IF・WX 10×50 IF) を開発し、製品化を実現した。発売後、本製品は、性能を妥協なく追求した製品として、高い評価を得ている。発売当初は、光学性能に特化した製品で市場に受け入れられるか懸念があったが、期待を上回る売上げを上げている。

参 考 文 献

- 1) 株式会社ニコンビジョン, 双眼鏡及び接眼レンズ, WO2018/025768
- 2) 吉田正太郎:天文アマチュアのための新版 屈折望遠鏡 光学入門 (誠文堂新光社)

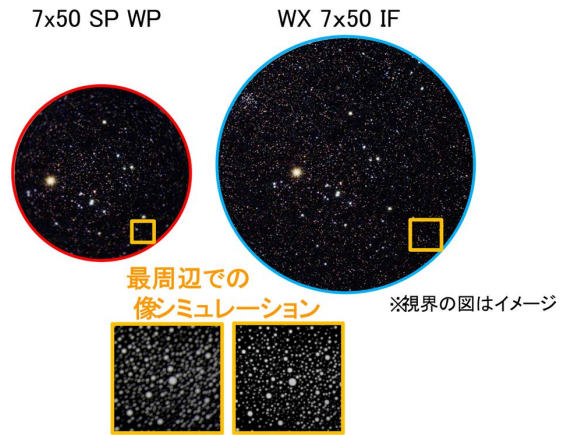


Fig. 14 従来品とWX 7 x 50 IFの光学性能の比較

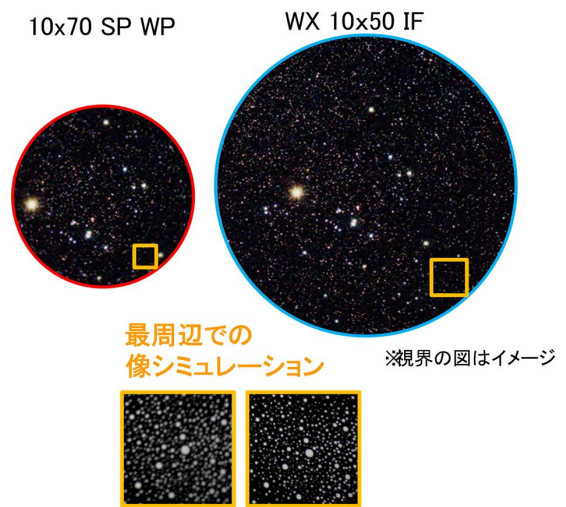


Fig. 15 従来品とWX 10 x 50 IFの光学性能の比較

ライトフィールド光学と3次元空間の表現

岩根 透*

Light-field optics, 3D space transformation onto 2D plane

Toru IWANE*

ライトフィールド光学は、コンピュータの発達、受光データのデジタル化によって可能となったいわゆる計算機光学のひとつで、これまでの結像光学とはその基本的な考え方が異なっている。これまで完成された画像、すなわち位相情報を失った2次元の光の強度分布を記録していたのに対して、奥行を含めた3次元データを情報の塊として取得し、それから画像を含めた有益な情報をコンピュータで切り出し算出するというものである。3次元空間データがそのまま記録されているので、これまでの撮影作業—焦点合わせや絞りの決定など—は、ライトフィールド光学ではポストプロセッシングで可能となる。これはリフォーカス機能としてよく知られたものである。そして、幾何光学の可逆性から、2次元面上に記録された3次元空間は、記録時と逆のプロセスで復元することができる。すなわち2次元面上に表示された符号化データから、3次元空間つまり空間の光線状態が再現できる。これは、3次元光線空間再現装置、裸眼3次元表示装置であり、表示面と像の光学的共役関係の拘束がない光学装置である。このライトフィールド光学の概観を説明する。

Light-field optics is different from conventional imaging optics. This technique was produced based on development of computer and digitalized light detector data. In contrast that 2D images or pictures, 2D light amplitude distributions which do not include depth nor phase information, are captured from 3D scene in conventional optics, in light field optics 3D space or conditions of rays in 3D space are recorded on 2D detector plane as they are. Though this concept of light field optics seems to be similar to holograph, a system of the light-filled optics uses neither diffraction nor interference of light but uses geometric optics and computational processing instead. Acquired data on 2D plane contain depth information and a 2D image of any focal position can be composed from the data by post processing; this process is well known as "refocusing". In addition from reversibility of geometric optics, these coded data on 2D plane can be transformed back to conditions of rays in 3D space again through same optical system. This can be thought as a glass-free 3D display. As an image is reconstructed from coded data, image is not necessarily optically conjugated with a display plane which shows coded data. Then optical system of light field optics is free from limit of optical conjugation. I introduce theorem of light field optics and its applications in this report.

Key words ライトフィールド、インテグラルディスプレイ、3次元表示、コンピューティショナルフォト plenoptics, integral photo, 3D display, light field camera, computational photograph

1 はじめに

世界は光で溢れていて、空間には光線が充満している。その一部が眼に入射して光像を網膜に結ぶ。我々は、大昔からこの像で世界を把握し、像を介して世界を表現してきた。ラスコー洞窟の壁画から始まる絵画の歴史、そして19世紀にはじまる写真の歴史はそれを引き継ぐものである。次に三枚の絵を示そう。左の絵は現存する最古の絵画であるラスコー洞窟の壁画である。バイソンやシカなどが描かれており、その世界の様子は絵画から認識可能である。中央の絵は15世紀のオランダの画家ファン・エイクによるもので、写真のような表現、つまり網膜に結ぶ像を忠実に再現している。空間はこの画像によって確かに再現されている。右の絵画は、ピカソによるもので、先の絵画とは異なる

り、画像として認識が困難である。この絵は、複数の視点を一枚の絵の上に描き、空間と立体を表現しようとしたものである。

こうした二次元面上の画像表現から脱して、空間にある

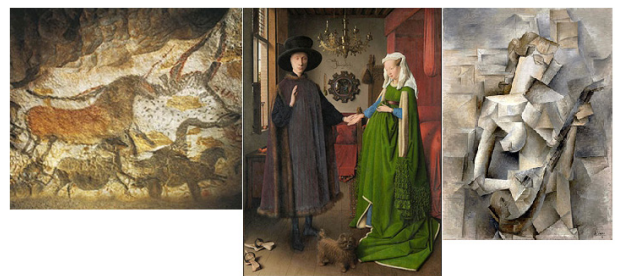


Fig. 1 画像による空間の表現の発展（左 ラスコー壁画，中 ファンエイク油彩，右 ピカソ油彩）

* 経営戦略本部 事業戦略部

光をそのまま記録、再現しようという方法が現れてきた。多くの光線の状態を、画像を介さずにそのまま記録し、再現するのである。それがライトフィールド光学である。それまでの立体と云えば2次元画像に奥行きを付与するという概念が支配的であったが、そうではなくて3次元の空間をそのまま2次元上に符号化して記録し、これを復号して空間を再現しようというものである。

この概念はもともと1908年にリップマンによって提唱されたものであるが、銀塩フィルムに糊と鍍の道具立てでは得られた画像の操作はいかんともし難い。そのまま、この技術は、デジカメの現れる21世紀になるまで忘れ去られることになる¹⁾²⁾。受光データのデジタル化に加え、視覚を超える“無駄”な高精細カメラやディスプレイが現れてきたことにより、この光学システムは甦ってきた³⁾。なかなか実用化しないホログラムによる汎用立体表示に代わり、ライトフィールド光学が研究、開発されるようになってきたのである。

ニコンのライトフィールド光学開発の歴史は、意外に古い。1980年代に日本のカメラメーカーはいわゆるハネウェルによるAF特許裁判に巻き込まれた。一眼レフAF (Automatic Focusing) で先行していたミノルタはこの特許紛争をハネウェルと正面から戦い一敗地に塗れてしまった。その結果300億の特許賠償を払ったと言われている。こうした状況下、ニコンは結局この特許の使用権を使ってないにもかかわらず60億で買うことになる。ハネウェルのこの焦点検出方式 (TCL) をどうにか有効利用できないかと使い道を探ることとなった。その後、デジカメの基礎となる2次元のエリアセンサーが出現した。マイクロレンズアレイとエリアセンサーを組み合わせれば、TCL方式を発展させた原理により、撮影画面全体の焦点検出が可能であることがわかった。

画面全体の奥行き情報の取得は、とりもなおさず空間とその奥行きを直接記録であって、ライトフィールド光学に他ならないのである。本来の目的の焦点検出のほかに、後処理によって2次元像の焦点可変や絞りが変更ができることに気づき、それを実験で確かめたところ、スタンフォード大学でも同様の研究をおこなっていて、ライトフィールドと呼んでいるらしいということを知ったのである⁴⁾。彼らは、後に最初のライトフィールドカメラを発売した Lytro 社となるグループである。

2 光線の再現

さて、それでは空間中の光線はどのような仕組みで再現すればいだろうか。光線は、空間上直線と考えることができるから、空間上に平行に置かれた2枚の平面を考えると、それぞれの2つの交点で直線を定義することができる。ひとつの交点の平面上の座標は、光線の通過位置であり、

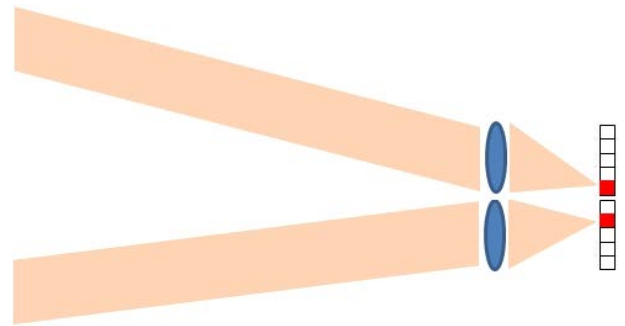


Fig. 2 点灯画素を変化させると出射光の方向が変わる。

他方の交点との座標の差分は、進行方向である。すなわち、光線は、位置と方向の2つの2次元データの組、4次元データとして表されるのである。

光線を定義する方向と位置のうち、位置に関しては簡単に実現することができる。2次元平面ディスプレイの発光位置が光線の通過位置である。したがって、問題は光線の方向の再現である。これは、高精細の平面ディスプレイと小レンズの組み合わせで実現することができる。Fig. 2において、最下部の画素だけが点灯しているとき、この組み合わせの小レンズから、光線は斜め上方に出射される。この光線の出射方向は点灯する画素を変えることで変化させることができる。これから配列された小レンズと、高精細平面ディスプレイの組み合わせで、任意の方向と位置で規定される光線を再現することができる。これから、ライトフィールドディスプレイの構造はレンズアレイと高精細平面ディスプレイからなることがわかる。レンズアレイ中の小レンズの座標が光線の位置を表し、小レンズの内部の画素座標が方向を表すことになる⁴⁾。

光線の再現が可能になったとして、これから3次元空間を光線でどのように記述すればいだろうか。我々は、光線で空間を表すことに慣れていない。3次元空間のもっとも基礎的な要素は、空間中の点光源である。空間像は数多くの点光源から成立する。点光源を光線で記述することは難しくはない。その点光源を通過する光線群を考えれば十分である。

2次元画像を構成するひとつの光点は、2次元ディスプレイのひとつの画素で表現することができる。一方、ライトフィールドディスプレイでは、一つの光点を再現するためには多くの光線つまり微小画素が必要になる。しかしながら、ライトフィールドディスプレイでは、点灯する画素のパターンを変化させることで異なる任意の深さの空間に光点を合成することができる。Fig. 3にその例を示す。上に示した例と下の例では、点灯パターンが異なっているだけである。小レンズから出射した光線は、空間中の異なった深さで交わり、点光源を空間中の異なる位置に生成する⁶⁾⁷⁾。

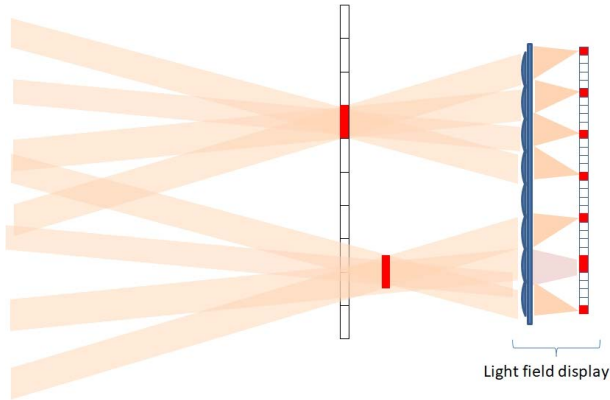


Fig. 3 画素の点灯パターンを変えると、異なる深さに点光源が再現される。

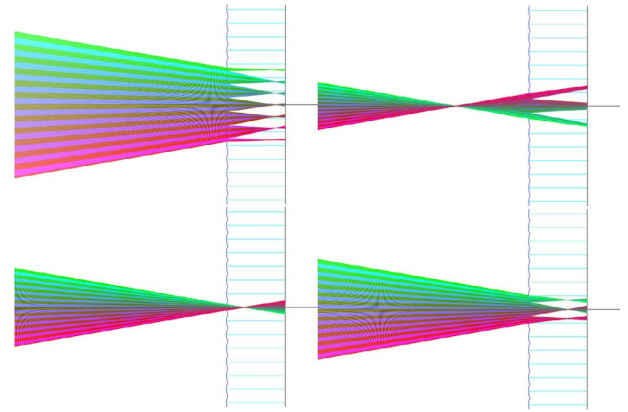


Fig. 4 光線追跡図。レンズアレイを通して点光源は、2次元のパターンに変換される。

3 3次元空間を2次元面で表現

それでは、高精細平面ディスプレイの点灯パターンはどのように決めればいだろうか。幾何光学の可逆性から、空間上の点光源からディスプレイ面に光が向かう場合を考えてみる。Fig. 4 にその光線追跡を示す。Fig. 4 には点光源の異なる4つの奥行きに点光源がある例を示している。図中、左の縦の波線はレンズアレイの前面であり、右の縦線はディスプレイ面である。左上図では点光源は左端にあり、右上図では点光源はレンズアレイに近づいた位置にある。下段は、点光源がレンズアレイの右側にある場合を現している。

レンズアレイに入射した光は、ここでいくつかに分けられ、離散的な光分布をディスプレイ面上で示す。左上の図では、入射光は7つに分けられて、右上図では3つに分けられている。この光分布の離散化の様子が、点光源の深さを表現している。

Fig. 5 にディスプレイ面での光分布の状態を表す。点光源が $6f$ 、すなわちレンズアレイの焦点距離の6倍位置にあるとき、光分布（パターン）は、右上に示すようなものとなり、 $3f$ のときには右中に示すような形状となる。パターンの総面積は、形状によらず一定である。

2次元のパターンと2次元空間の点光源は別空間であるが、同じものであり、レンズアレイを介して、互いに交換することができる。これから、ライトフィールド光学は3次元点像を2次元の面に移すものであることがわかるだろう。

先に述べたように、3次元空間像は、数多くの点光源の集合とみなすことができる。したがって、2次元面上でこれらの点光源に対応するパターンの重畳は、3次元空間像を表すことに他ならない。これがライトフィールドデータである。ライトフィールドデータは、空間を2次元面上に展開されるデータで表したものである。Fig. 6 に実際のライトフィールドデータを示す。このデータの中に奥行き情報や、異なる視点から映像が含まれている。最初にお見せし

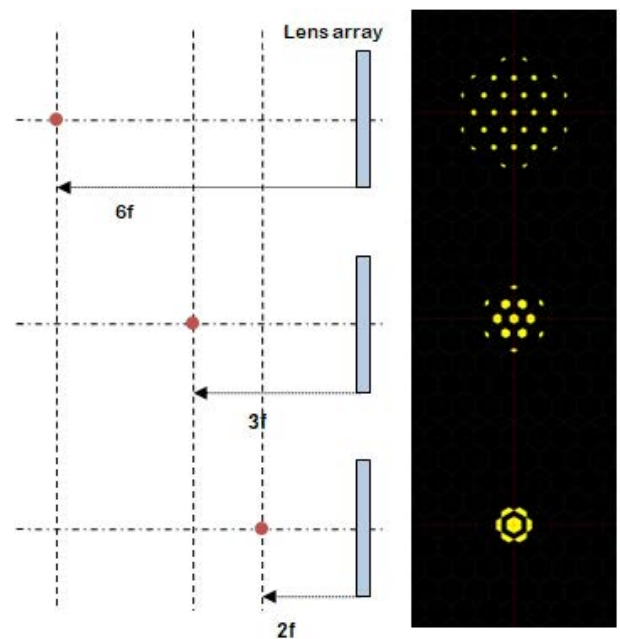


Fig. 5 パターンと点光源の関係。右のパターンと点光源は別空間の同一のものともなせる。

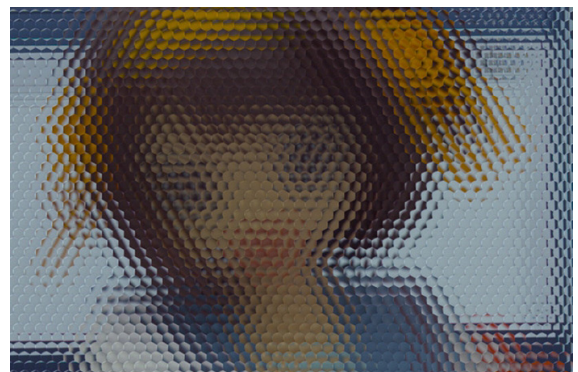


Fig. 6 実際のライトフィールドデータ。レンズアレイの配列で細分されている。

た絵画を思い出して貰いたい。ピカソの絵に似ていることに気が付くかもしれない。立体を多くの視点から見て、これを一枚の2次元像に情報として埋め込むプロセスは、ラ

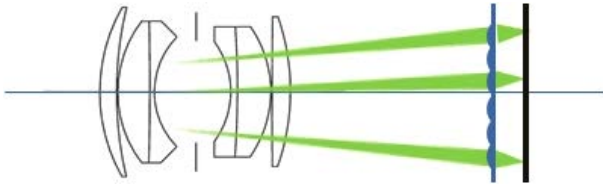


Fig. 7 ライトフィールドカメラの概念図

イトフィールドと同じである。画像としては分かりにくい
が、一定の論理性を持っている。高度な才能の持つ人の試
行は、技術に先行しているものである。

さて、それでは、このライトフィールドデータはどのよ
うにして入手することができるだろうか。ライトフィール
ドカメラによって、空間像をライトフィールドデータに変
換することができるのである。ライトフィールドカメラは、
ライトフィールドディスプレイと逆のシステムと考えると
分かりやすい。ライトフィールドカメラの概念図を Fig. 7
に示す。レンズアレイとディスプレイの代わりに撮像素子
が装備されていて、そこに入射光の開口を制限するため
に撮影レンズが付加されている。通常のカメラで、撮像素子
の直前にレンズアレイが装備されたものと考えてもいい。

外空間は、撮影レンズで縮小された像としてレンズアレ
イ付近に移行され、この像がレンズアレイによってライト
フィールドデータに変換される。

ライトフィールドカメラによって撮影された空間は、ラ
イトフィールドディスプレイによって空間像として再現す
ることができるのである^{5)~7)}。

4 ライトフィールドディスプレイ

先に述べたようにライトフィールドディスプレイの構造
は非常に簡単である。Fig. 7で示すようにレンズアレイ
プレートが高精細平面ディスプレイ直上に装備されている⁴⁾⁵⁾。
平面ディスプレイにライトフィールドデータが表示され
ると、立体像がレンズアレイ近傍に出現する。

Fig. 9に実際のライトフィールドディスプレイを示す。こ
れは、市販のスマートフォン上にレンズアレイプレート
が載せられている。図で表示されている画像は、自社カ
メラを改造した試作のライトフィールドカメラで取得したも
のである。レンズアレイはハニカム配列で小レンズが稠密
に配置されたものであり、一つの小レンズの直径は、表示
画素14個分に相当する。画素サイズは 31.7 μm である。レ
ンズアレイはポリカーボネートの基材上にポリマーを成型
して製作している。レンズアレイの仕様を次の表1に示す。

Fig. 9に示すようにライトフィールドカメラで撮影され
た空間が、光学的に縮小されているが、3次元像として再
現されている。再現されている立体空間像は、よく知られ
たステレオ画像ではなく、体積を持った像である。

さて、立体表示と言え、ある程度の年齢の方には、映

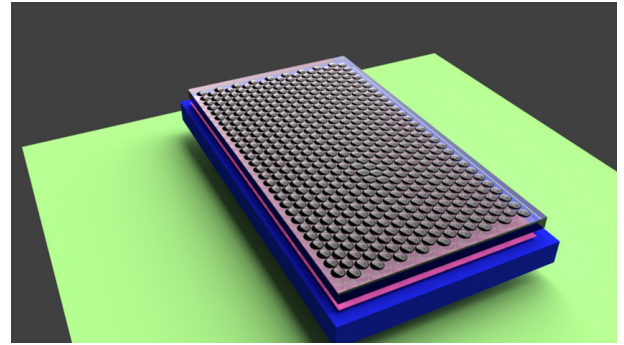


Fig. 8 ライトフィールドディスプレイの構造。レンズアレイ
と平面表示機からなる。

Table 1

焦点距離	直径	F数	画素サイズ	厚さ
1.33 (mm)	0.44 (mm)	3.0	31.7 (μm)	0.6 (mm)



Fig. 9 スマートフォンを使用したライトフィールドディス
プレイ

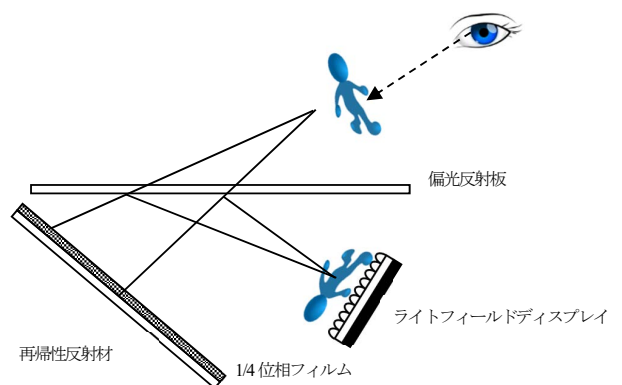


Fig. 10 空中立体表示装置の構造

画スターウォーズのレイア姫であろう。こうした空中立体
像は、空中表示装置とライトフィールドディスプレイを組
み合わせることで完全再現とは言わないけれども可能に
なる。Fig. 10に空中立体ディスプレイの概念図を示す。この

表示機は、ライトフィールドディスプレイと、偏光反射板、 $1/4\lambda$ 位相フィルムと再帰性反射材から成立している⁸⁾⁹⁾。再帰性反射材は、小さなコーナーキューブが数多く敷き詰められた構造をしており、入射した光は、入射してきた方向に戻る。つまり光の進行方向を反転する機能を持っている。交通標識などに使われている反射材を精密したものと考えればよい。

ライトフィールドディスプレイから出射された光は、表示機が液晶なので直線偏光しており、偏光反射板で反射され、 $1/4$ 位相フィルムを通して再帰性反射材に入射する。ここで反射した光は再び位相フィルムを通して、入射した時と同じ経路を逆にたどり、偏光反射板に至る。この時偏光面は 90° 回転していて、光は偏光反射板を通過する。本来、ライトフィールドディスプレイで生成された立体像に戻る光は、偏光反射板に反対側の空中に立体像を形成する。

Fig. 11 に、この空中表示装置の実例を示す。空中に立体の脳の像が浮かんでいるのがわかる。この像は、立体のCG画像からライトフィールドデータを合成し、このデータをライトフィールドディスプレイに出力することで得られたものである。

この光学系の問題は、光の進行方向が反転しているのでライトフィールドディスプレイで表示された立体像を裏側から観察することになり、立体像の遠近が反転することである。これを解決するためには、あらかじめ遠近を反転した立体画像を表示し、この表示装置の光路で再反転する方法をとる。これはそれほど難しいことではない。立体像を構成する点光源をレンズアレイ面について鏡面对称に移動させればよい。先に述べたように、点光源を構成する光線の方向は、小レンズ内の座標で決定される。この座標の正負を反転すれば、光線の方向は光軸に対して反転し、光線群の交点、つまり点光源はレンズアレイの反対方向に移動する。したがって、ライトフィールドデータをそれぞれ的小レンズ領域毎に反転すれば、生成される立体像はレンズアレイの反対側で遠近反転することになる。

Fig. 12 に空中立体表示機の別の例を示す。これはスマートフォンサイズ5.5インチの立体表示で、ハチが空中に表示されている。こうした表示装置は、スマートフォン用の高精細ディスプレイが容易に入手できるので、簡単に製作できる。

空中表示ではないが、スマートフォンやスマートウォッチに立体のアバターが立ち上がっているような表示（斜方の立体）も可能である。表示機の高精細化と処理能力の向上により、ライトフィールド光学を使用した可能性は大きく広がってきている。

5 まとめ

ライトフィールド光学では、光線を再現することで体積

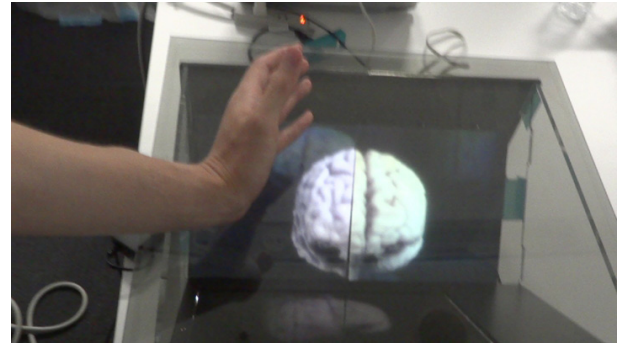


Fig. 11 実際の空中立体表示装置

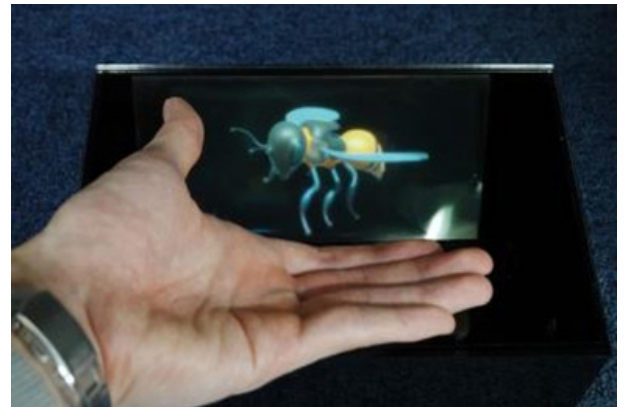


Fig. 12 もう一つの空中立体表示機の例

型の立体像を生成できることを示した。これは、2次元面に記録された符号化データと3次元の空間像の変換の問題であり、概念的な枠組みは、方法論は違うけれども、ホログラムに近い。ホログラムは、空間の小さな点が全画面に展開されるのに対して、本タイプのライトフィールド光学では、小レンズの大きさに展開されるだけなので、表示面の分解能に対する再現像テクスチャーの“歩留まり”が良い。これは、“無駄に”高精細化されたディスプレイや撮像素子の“無駄な”部分を利用すれば、それなりの3次元像を生成できることを意味する¹⁰⁾。そういう意味で、8K表示や放送の登場は、非常の良いタイミングである。実際、本技術にはかなりの引き合いがある。

立体表示を中心に述べてきたが、符号化した2次元データを光線群に変換するという概念から、立体とは異なる用途も考えられる。表示されるデータは符号化されたものであるから、表示面と出現する像の間に、光学的な共役関係はない。これは有益な条件である。たとえば、ヘッドマウントディスプレイを考えると、この装置は通常、小型表示機の表示面と網膜を光学的に共役とする光学系を小さく高視野に製作するという問題である。ライトフィールド光学系はこの制約はないから、表示機を網膜に結像しえないメガネレンズの位置に置いて、網膜上に像を形成することが可能である。スマートフォンやタブレットで像を表示面の後方1mの位置に表示させれば、観察者が老眼や遠視でも

表示機を明視距離（25 cm）に置いて視認することができる。これらは、ここでは紙数の都合で述べてはいないが、既に原理試作での確認を終えている。

最後に、本来ならカメラについての論考が要請されることであるが、本論文では、ほとんどカメラには触れていない。ライトフィールドカメラは、3次元の空間をライトフィールドデータに変換する装置で、つまり情報の材料を作る装置で、それを料理するものではない。ライトフィールド技術により厚さが1 mm以下のカメラなど機械的な特性として面白いものは可能であるけれども、情報の活用という観点からは、面白さに欠けるので省略した。別の機会としたい。

本技術の研究の継続に尽力いただいた、研究開発本部の皆様へ謝意を表したい。

参 考 文 献

- 1) G. Lippmann, *Académie des Sciences*, pp. 446–451 (1908).
- 2) T. Georgiev, <http://www.tgeorgiev.net/Lippmann/index.html> (2008).
- 3) E. Adelson and J. Wang, *IEEE Trans., PAMI* 14, pp. 99–106 (1992).
- 4) R. Ng, M. Levoy, M. Bredif, G. Duval, M. Horowitz and P. Hanrahan, *Light Field Photography with a hand-held plenoptic camera*, Stanford University Computer Science Tech Report **CSTR 2005-02** (2005).
- 5) B. Javidi and F. Okano, *Three-dimensional TV, video, and display*. (Springer Science and Business Media) (2002).
- 6) T. Iwane and M. Shoda, *Optical Engineering*, 57(6), **061616**, (2018).
- 7) S.-W. Min, M. Hahn, J. Kim and B. Lee, *Opt. Exp.*, 13, pp. 4358–4369 (2005).
- 8) H. Yamamoto, Y. Tomiyama and S. Suyama, *Opt. Exp.*, 22, pp. 26919–26924 (2014).
- 9) T. Iwane, *OSA Imaging and Applied Optics*, (2016).
- 10) T. Iwane, *Photonics West 2019*, **10943-7**, (2019).

ガス浮遊熔解で作製した Ga₂O₃ 系ガラスの光学特性

吉本幸平*, 江面嘉信*, 上田 基*, 水口雅史*

Optical properties of Ga₂O₃-based glasses prepared by aerodynamic levitation

Kohei YOSHIMOTO*, Yoshinobu EZURA*, Motoi UEDA* and Masafumi MIZUGUCHI*

近年の光学設計の多様化に伴い、従来と異なる新しい光学特性を持った材料の実現が望まれている。特にガラスは光学的に高い品質を得ることが可能であるため、光学材料として広く利用されている。ガス浮遊熔解法は、一般的なるつぼ熔解では得られない新しいガラス組成を合成できる手法である。筆者らは、通常手法では全くガラスになりえない組成の一つである La₂O₃-Ga₂O₃ 系が本手法でガラス化することを見出し、その基本特性を明らかにした。このガラスは 1.9 を超える高い屈折率に加え、紫外～中赤外にわたる広い透過帯域など特異な光学特性を示すことが分かった。更に高屈折率成分である Nb₂O₅, Ta₂O₅ を導入することで、既存の光学ガラスでは実現されていない高屈折率分散領域に新たな組成を見出した。屈折率分散特性における Nb₂O₅, Ta₂O₅ の効果については、単一振動子モデルを用いて定量的に解析した。また、Er³⁺ を発光中心として賦活することで、明瞭な中赤外発光を確認した。当ガラス組成では、Er³⁺ を高濃度導入しても濃度消光の影響が小さいことがわかり、その発光メカニズムについて考察を行った。以上より、ガス浮遊熔解法で得られる Ga₂O₃ 系ガラスは、光学材料として優れた基本組成となりうることが示唆される。

Aerodynamic levitation method is useful for vitrifying new materials with low glass-forming ability. In this study, we first report the optical properties of a simple La₂O₃-Ga₂O₃ binary glass synthesized by this method. The sample exhibits high refractive index > 1.9 and optical transparency over a very wide wavelength range, from the ultraviolet to mid-infrared region. The Raman scattering spectrum shows a maximum phonon energy of approximately 650 cm⁻¹, one of the lowest reported values in oxide glasses. Next, in order to improve the optical properties, Nb₂O₅ and Ta₂O₅ were introduced into the La₂O₃-Ga₂O₃ glass as the third element. As a result, excellent optical properties with high refractive index and lower wavelength dispersion were realized. The effects of the addition of Nb₂O₅ and Ta₂O₅ on the optical properties are discussed using a single oscillator model. Finally, the emission properties of Er³⁺-doped La₂O₃-Ga₂O₃ glasses with high doping concentrations were evaluated. The samples showed an intense emission at 2.7 μm without serious quenching even for high doping concentrations. These results suggest that the Ga₂O₃-based glasses obtained in this study can be used as promising materials for optical applications.

Key words ガス浮遊熔解, 光学ガラス, 屈折率, 透過率, 発光特性
aerodynamic levitation, optical glass, refractive index, transmittance, emission property

1 はじめに

レンズなどの光学素子に使用される材料には、高い均質性、優れた透明性、多様な屈折率とその波長依存性（分散）などが要求される。ガラスは他の材料と比較して上記の面で優れており、光学材料として広く利用されている。ガラスの合成手法としては、るつぼ内で原料を高温で熔融し、融液を急冷してガラス化させる「熔融急冷法」が一般的である。しかし急冷中の結晶析出を防ぐには、SiO₂ や B₂O₃, P₂O₅ などの網目酸化物を多量に導入する必要がある。それ

が組成開発上の制約になる場合が多い。特に、高屈折率、低分散、高（広）透過率などを有する光学材料は、非常に高い需要があり実現が望まれているが、通常の熔融急冷法では、既存の領域から大きく逸脱した組成・物性を持つガラスを得ることは、非常に困難だといえる。

近年、ガス浮遊熔解法をガラス合成技術として利用し、網目酸化物を含まない超高屈折率、高透過率を持つガラス材料が報告されている^{1)~3)}。筆者らはガス浮遊熔解法を用いることで、La₂O₃-Ga₂O₃ の二成分系ガラス⁴⁾ と、更に第三成分を加えた三成分系ガラスの光学特性⁵⁾、及び発光特

* 研究開発本部 材料・要素技術研究所

性⁶⁾について評価した。本稿ではそれらの結果について紹介する。

2 ガス浮遊熔解法

Fig. 1 に本研究で実施したガス浮遊熔解の模式図を示す。ガス浮遊熔解法では、非接触状態を維持したまま融液を冷却・凝固させるため、容器-融液の固液界面で生じやすい不均一核生成を最大限抑制することができる。このため、本来結晶化しやすい組成であってもガラスを得ることが可能になる。加えて、容器由来の不純物汚染を原理的に回避できることや、容器を用いないため事実上熔解温度に制限がないこと等が特徴である。試料の大きさに制約はあるが、従来法では得ることができない新しい組成・機能を持ったガラスを合成することができるため、新規の材料探索などに有効である。

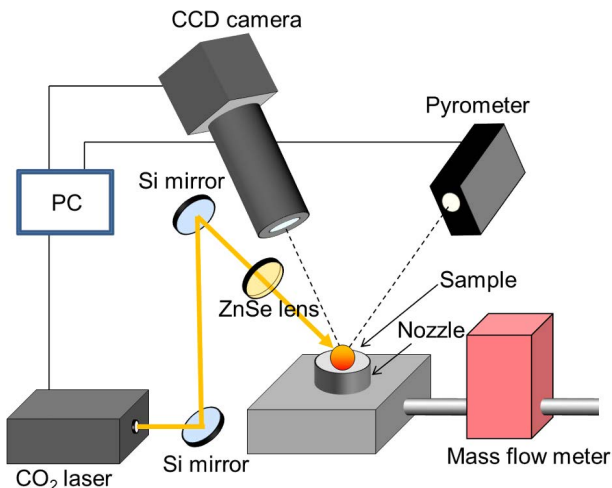


Fig. 1 ガス浮遊熔解の模式図

本研究におけるガラス合成手順・条件を以下に示す。まず原料を所定の比率で混合後、錠剤状に加圧成形し、大気中1200℃で6時間熱処理して焼結体を得た。次にノズルからガスを出して焼結体を浮上させたまま、CO₂レーザーで試料を加熱・熔解した。浮上用のガスには酸素を用いた。試料の温度・状態は放射温度計とCCDカメラでモニターした。試料が完全に融解したことを確認後、CO₂レーザーをオフにすることで融液を急冷してガラスを得た。得られたガラスは、ガラス転移温度付近で10分間アニールを行い、除歪した後に評価に使用した。

3 Ga₂O₃系ガラスの光学特性

(1) La₂O₃-Ga₂O₃ 二成分系

以降、ガラスの組成は全てmol%単位で表記する。ガス浮遊熔解を適用した結果、 $x\text{La}_2\text{O}_3-(100-x)\text{Ga}_2\text{O}_3$ 系では $x=25\sim55$ （ただし $x=40$ では結晶化した）においてガラス化を確認した。得られたガラスは無色透明、直径約3mm

の球形であった。Fig. 2に50La₂O₃-50Ga₂O₃ガラスの紫外、赤外域での吸収端近傍の透過スペクトルを示す。透過率のカットオフ波長は紫外、赤外側でそれぞれ約280nm、約8μmであり、酸化ガラスとしては極めて広帯域にわたり光透過性を示した。紫外域の透過特性には、容器起因の不純物汚染が少ないことに加え、La₂O₃、Ga₂O₃の固有吸収がBi₂O₃やPbOなど屈折率が高い重金属酸化物と比べて短波長に位置していることが要因だと考えられる。

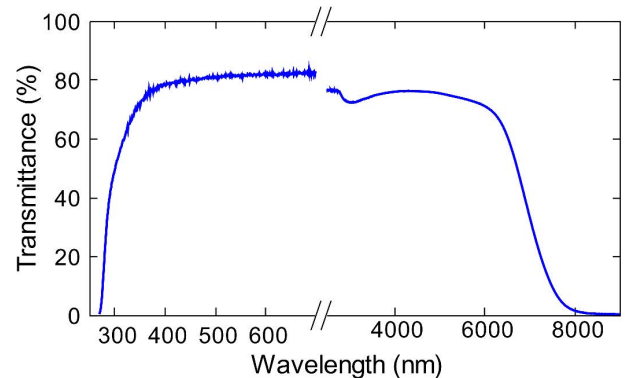


Fig. 2 50La₂O₃-50Ga₂O₃ガラス（厚さ1mm）の光透過スペクトル。透過率値は表面反射による損失分を含む

赤外域における吸収端位置は、主にガラスの格子振動特性に依存する。Fig. 3に50La₂O₃-50Ga₂O₃ガラスのラマン散乱スペクトルを示す。非架橋酸素を持ったGaO₄四面体の伸縮振動⁷⁾による650cm⁻¹付近のピークが最も高波数に確認された。SiO₂、B₂O₃、P₂O₅など網目酸化物に分類される成分は、共有結合性が高く陽イオンと酸素間の結合強度が大きいため、いずれも1000cm⁻¹超の高いフォノンエネルギーを示す。このため多くの網目酸化物をベースとするガラスの赤外吸収端は3~4μm付近に位置する。一方、Ga-Oの結合強度は網目形成酸化物と比べて小さく、有効質量も比較的大きいため、フォノンエネルギーが小さく赤外吸収端が長波長に位置していると考えられる。

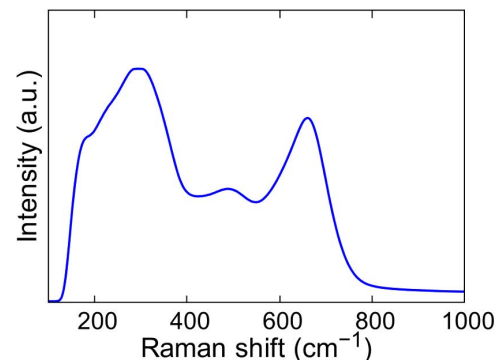


Fig. 3 50La₂O₃-50Ga₂O₃ガラスのラマン散乱スペクトル

次に、La₂O₃-Ga₂O₃ガラスの屈折率・分散特性について説明する。屈折率はプリズムカップリング法によって測定した。50La₂O₃-50Ga₂O₃ガラスにおける屈折率 n_d とアッペル数 $\nu_d=[(n_d-1)/(n_F-n_C)]$ は、それぞれ 1.9537 ± 0.0003 、

33.6±0.5であり、高い屈折率を有することが分かった。ここで、 n_d , n_F , n_C はそれぞれヘリウムの d 線 (587.562 nm), 水素の F 線 (486.133 nm), 水素の C 線 (656.273 nm) における屈折率である。さらに、以下の Lorentz-Lorenz 式から酸素の分極率 α_{O_2} を算出した。

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \frac{M}{\rho} = \frac{4}{3} \pi N_A \left(\sum_i \alpha_i + \alpha_{O_2} N_{O_2} \right)$$

ここで、 M はガラスの平均分子量、 ρ はガラスの密度、 N_A はアボガドロ定数、 α_i はカチオンの分極率⁸⁾⁹⁾、 N_{O_2} は分子 1 mol あたりの酸素数である。50La₂O₃-50Ga₂O₃ ガラスにおける α_{O_2} は 2.36 Å³ と試算され、SiO₂ 系ガラスや B₂O₃ 系のガラス¹⁰⁾ と比べかなり大きい値であることがわかった。これは、当ガラスが非常にイオン結合性の高いガラスであることを意味しており、網目酸化物ベースのガラスとは分極特性も大きく異なっていることを示唆している。

(2) 成分添加による光学特性制御

前述のように、La₂O₃-Ga₂O₃ ガラスはシンプルな組成でありながら、非常に特徴的な光学特性を示すことがわかった。しかし二成分系では得られる物性の幅は狭く、実用性については改良が必要である。そこで、第三成分を導入することで屈折率・分散特性の制御を試みた。まず 55La₂O₃-45Ga₂O₃ と 30La₂O₃-70Ga₂O₃ ガラスをベースとし、各種酸化物を La₂O₃ もしくは Ga₂O₃ と置換導入した際の n_d , v_d 変化を調査した。結果を Fig. 4 に示す。尚、置換時のカチオン量は一定とした。例えば Nb₂O₅ と WO₃ の場合、それぞれ 55La₂O₃-35Ga₂O₃-10Nb₂O₅, 55La₂O₃-35Ga₂O₃-10(WO₃)₂ の組成で導入した。置換量は (MgO)₂ のみ 5 mol%, その他は全て 10 mol% とした。網目酸化物である SiO₂, B₂O₃ では n_d は低下し、Nb₂O₅, Ta₂O₅, TiO₂, WO₃ 等の遷移金属酸化物は大きく n_d を上昇させた。本検討では、遷移金属酸化物の中でも v_d の低下量が小さい Nb₂O₅, Ta₂O₅ に着目した。以下、La₂O₃-Ga₂O₃ 系へ Nb₂O₅, Ta₂O₅ を導入した際の光学特性について報告する。

Fig. 5 にガス浮遊溶解法を用いた場合の La₂O₃-Ga₂O₃-M₂O₅ (M=Nb, Ta) 系のガラス形成範囲を示す。ガラス形成範囲は広い組成範囲に連続的に分布していることが分かった。M₂O₅ の添加効果を系統的に調べるため、以降では以下に示す 4 通りの組成系について評価した。

- 5LGN···50La₂O₃-(50-a)Ga₂O₃-aNb₂O₅ (a=0~30 mol%)
- 3LGN···30La₂O₃-(70-b)Ga₂O₃-bNb₂O₅ (b=0~70 mol%)
- 5LGT···50La₂O₃-(50-c)Ga₂O₃-cTa₂O₅ (c=0~30 mol%)
- 3LGT···30La₂O₃-(70-d)Ga₂O₃-dTa₂O₅ (d=0~60 mol%)

Fig. 6 に示差熱分析から求めた ΔT 値 (= $T_p - T_g$) の組成依存性を示す。ここで T_p は結晶化温度、 T_g はガラス転移

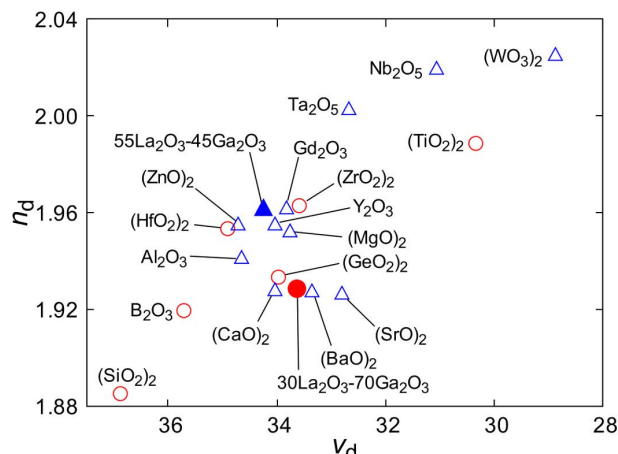


Fig. 4 La₂O₃-Ga₂O₃ ガラスへの各種酸化物の置換効果. 青色, 赤色のプロットはそれぞれ 55La₂O₃-45Ga₂O₃, 30La₂O₃-70Ga₂O₃ からの置換を意味する。アルカリ土類, 希土類は La₂O₃ から, その他の成分は Ga₂O₃ から置換した

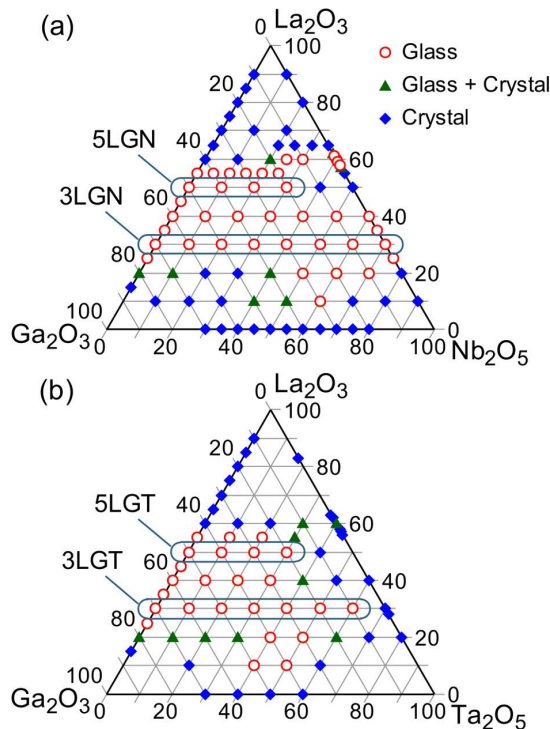


Fig. 5 (a) LGN 系, (b) LGT 系におけるガラス形成範囲

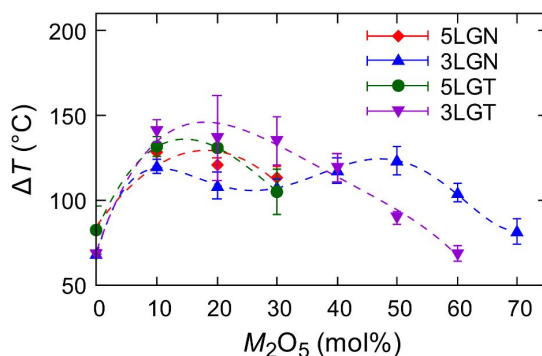


Fig. 6 LGN, LGT ガラスにおける ΔT 値の組成依存性

温度である。Δ*T* 値はガラスの熱的安定性の指標としてしばしば用いられる。Nb₂O₅、Ta₂O₅を一定量加えることで、La₂O₃-Ga₂O₃系よりもΔ*T* 値が大きく上昇することがわかった。すなわち、Nb₂O₅、Ta₂O₅の導入は、熱的安定化の観点からも有効であることが示唆される。

Fig. 7にガラスの*n_d*-*v_d*プロットを示す。いずれの系でも、M₂O₅の添加に伴い*n_d*は上昇し、*v_d*は低下した。Nb₂O₅のほうが添加量あたりの*n_d*上昇量は大きいのが、Ta₂O₅のほうが*n_d*上昇量に対する*v_d*の低下が抑えられていることがわかる。特にLGT系は、一般光学ガラス¹¹⁾と比べて高*n_d*、高*v_d*側に乖離した領域に位置していることがわかる。

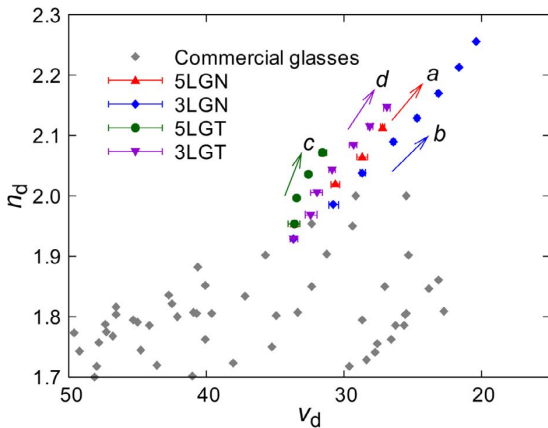


Fig. 7 LGN, LGT ガラスの n_d - v_d プロット (M_2O_5 量は 10 mol%間隔)。灰色のプロットは市販光学ガラス¹¹⁾を示す

屈折率特性の考察には、単一振動子近似の Drude-Voigt モデルを適用した。単一振動子近似の Drude-Voigt モデルでは、屈折率 n と波長 λ の関係は以下で記述される¹²⁾。

$$\frac{1}{n^2 - 1} = \frac{\pi m c^2}{e^2 N f} \left(\frac{1}{\lambda_0^2} - \frac{1}{\lambda^2} \right)$$

ここで、 m は電子の質量、 c は光速、 e は電荷素量、 N は単位体積当たりの電子数、 f は振動子強度、 λ_0 は固有共鳴波長である。Fig. 8 にフィッティングにより求めた Drude-Voigt パラメータを示す。 Nf 値は Ta₂O₅ 添加では上昇傾向を、Nb₂O₅ 添加では単調減少を示した。上式より、特定波長での屈折率は Nf と λ_0 のみに依存するので、 λ_0 (つまり分散) が同じであれば Nf 値が高いほど屈折率は高くなる。従って Fig. 8 の結果は、Fig. 7 における Ta₂O₅ の添加時の n_d - v_d 変化を定量的に表しているといえる。更に N と f でそれぞれ傾向を見てみると、 f においては Nb₂O₅、Ta₂O₅ 間で大きな傾向の違いはみられないが、 N は Ta₂O₅ 添加に伴い大きく増大することがわかる。これは振動に寄与する電子数密度が Ta₂O₅ 添加により大きく増加することを意味しており、LGT 系が LGN 系よりも高 n_d 、高 v_d 側に位置している要因だと推測できる。一方、Nb₂O₅ 添加による屈折率上昇は主として λ_0 の短波長化に起因しているため、Ta₂O₅ 添加系と比べてアッペ数の低下が大きいと考えられる。

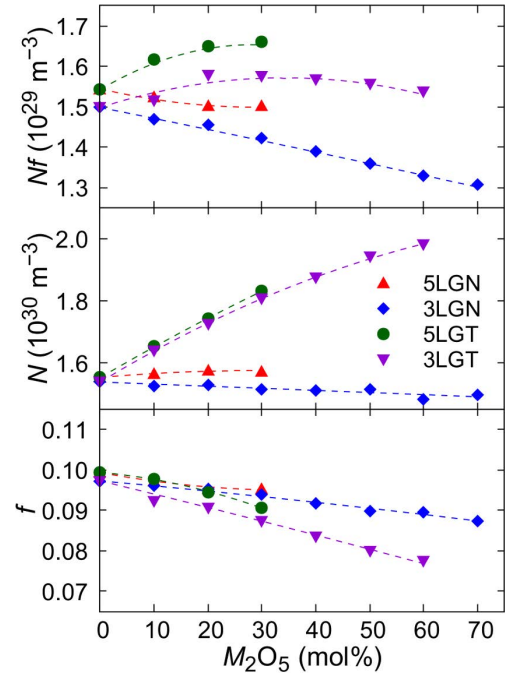


Fig. 8 LGN, LGT ガラスの Drude-Voigt パラメータ

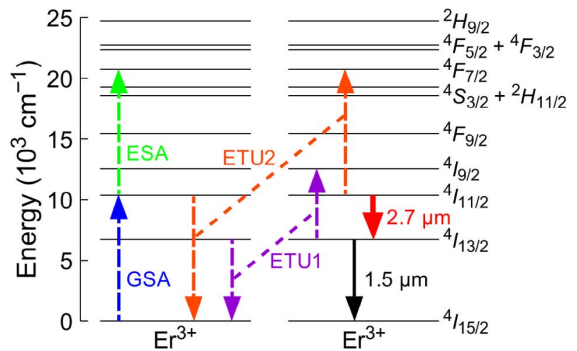


Fig. 9 Er³⁺のエネルギー準位図と発光機構

(3) 希土類賦活による発光特性

屈折率・分散や透過率など光学材料としての特性についてここまで述べた。一方 La₂O₃-Ga₂O₃ ガラスは、フォノンエネルギーが低く、ガラス中の OH 基量が少なく、希土類を多量に含有している等の特徴から、希土類を発光中心として賦活することで優れた発光特性が期待される。今回は、La₂O₃-Ga₂O₃ ガラスへ Er³⁺ を賦活した場合の赤外発光特性⁶⁾について述べる。

Fig. 9 に Er³⁺ のエネルギー準位図を示す。Er³⁺ の 4I_{13/2} → 4I_{15/2} 遷移に伴う 1.5 μm 帯の発光は、特に光通信用途で研究報告が多いが、Er³⁺ は 4I_{11/2} → 4I_{13/2} 遷移に伴う 2.7 μm 帯の発光も示すことが知られる。2.7 μm 帯は水の吸収帯域と一致しているため、生体・医療分野を中心に潜在的な応用が数多く期待される。しかし Er³⁺ の 2.7 μm 帯発光には主として以下の課題があり、多くの酸化物ガラスでは十分な効率が得られていない。

- ① 4I_{11/2} 準位と直下の 4I_{13/2} 準位とのエネルギー差が小さく、多フォノン緩和損失による効率低下が生じやすい。

- ②失活要因となる OH 基の除去が一般に困難である。
- ③ ⁴I_{11/2} 準位の寿命が ⁴I_{13/2} 準位のそれよりも短く（自己終端型遷移）、反転分布形成が困難である。

既に述べているように、La₂O₃-Ga₂O₃ ガラスは課題①②に対して有効な材料だといえる。一方、課題③に対しても以下の理由から当ガラスの有効性が予想される。⁴I_{11/2}-⁴I_{13/2} 準位間で反転分布形成を促進する手段として、材料中の Er³⁺ 濃度を高めることにより、エネルギー移動型アップコンバージョン (ETU) を発生させる方法が提案されている¹³⁾。この方法では、近接した Er³⁺ イオン間で生じる ⁴I_{13/2} 準位間の ETU により ⁴I_{13/2} 準位が非占有化され、同時に ⁴I_{9/2} 準位からの非輻射遷移を介して ⁴I_{11/2} 準位へエネルギー還元が生じるため (Fig. 9)、反転分布形成に有効であることが示されている。一般にガラスへ希土類イオンを多量に加えると結晶化や濃度消光を生じやすく、含有量は多くの場合数 mol% 程度が限界である。しかしガス浮遊熔解を適用した結果、yEr₂O₃-(50-y)La₂O₃-50Ga₂O₃ 系において、y=0~20 の範囲でガラスが得られることが分かった。ガラスの密度から求めた平均 Er³⁺ 濃度は、y=20 で 5.9×10²¹ cm⁻³ と非常に高いことを確認した。従って、Er₂O₃-La₂O₃-Ga₂O₃ 系ガラスでは Er³⁺ 濃度を高めることが容易であり、ETU の発生により ⁴I_{11/2}-⁴I_{13/2} 準位間の反転分布を促進できる可能性がある。

Fig. 10 に Er₂O₃-La₂O₃-Ga₂O₃ ガラスにおける 1.5, 2.7 μm 帯の発光スペクトルと相対発光強度を示す。1.5, 2.7 μm 帯ともに明瞭な発光ピークを確認した。2.7 μm 帯

の発光強度は y=10 付近まで y に伴い上昇しており、高い Er³⁺ 濃度にも関わらず濃度消光の影響が小さいことがわかった。一方、1.5 μm 帯の発光強度は y=1 をピークに急激に低下した。この発光強度における Er³⁺ 濃度依存性の違いは、⁴I_{13/2}, ⁴I_{11/2} 準位でそれぞれ生じる ETU で説明できる。まず y が小さい場合 (y<1) は Er³⁺ 間の距離は十分離れており、ETU はほとんど発生しない。y が上昇し Er³⁺ 間距離が近くなると、⁴I_{13/2} 準位間で ETU が発生して当準位が非占有化される。さらに y が上昇すると (y>10)、⁴I_{11/2} 準位間でも ETU が発生するため、2.7 μm 帯も消光すると考察される。このように Er₂O₃-La₂O₃-Ga₂O₃ ガラスでは、高 Er³⁺ 濃度で ⁴I_{13/2} 準位における ETU が発生していることを示しており、⁴I_{11/2}-⁴I_{13/2} 準位間における反転分布形成においても有効性があると考えられる。

4 まとめ

本研究では、ガス浮遊熔解法を適用して La₂O₃-Ga₂O₃ 系二成分ガラスを合成し、光学材料や発光材料としての可能性について検討した。このガラスは非常にシンプルな組成であるが、1.9 を超える高い屈折率や、広い波長帯域にわたる光透過性などの優れた光学特性を示した。また、酸化物ガラスとしてはフォノンエネルギーが小さく、イオン結合性が大きい等、通常の網目酸化物ベースのガラスとは大きく異なる特徴も確認した。

Nb₂O₅, Ta₂O₅ を第三成分として導入することで、既存の光学ガラスでは実現されていない高屈折率・高アッベ数領域に位置する新しい組成を見出した。単一振動子近似モデルによる解析を行い、Nb₂O₅ と Ta₂O₅ が振動子に与える影響が異なることを定量的に明らかにした。更に Er³⁺ を賦活することにより、優れた中赤外発光特性が実現できることを示した。以上のように、ガス浮遊法はガラスの組成探索において有用である。本研究で見出した新しい Ga₂O₃ 系ガラスは、今後の光学・発光材料の実用開発において基本的な組成になることが期待される。

5 謝辞

本研究を進めるにあたり、多大なるご助力・ご助言をいただきました東京大学生産技術研究所の井上博之教授、弘前大学理工学研究科の増野敦信准教授に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) A. Masuno, H. Inoue, J. Yu and Y. Arai: *J. Appl. Phys.*, **108** (2010) 063520.
- 2) H. Inoue, Y. Watanabe, A. Masuno, M. Kaneko and J. Yu: *Opt. Mater.*, **33** (2011) 1853-1857.
- 3) A. Masuno, H. Inoue, K. Yoshimoto and Y. Watanabe: *Opt.*

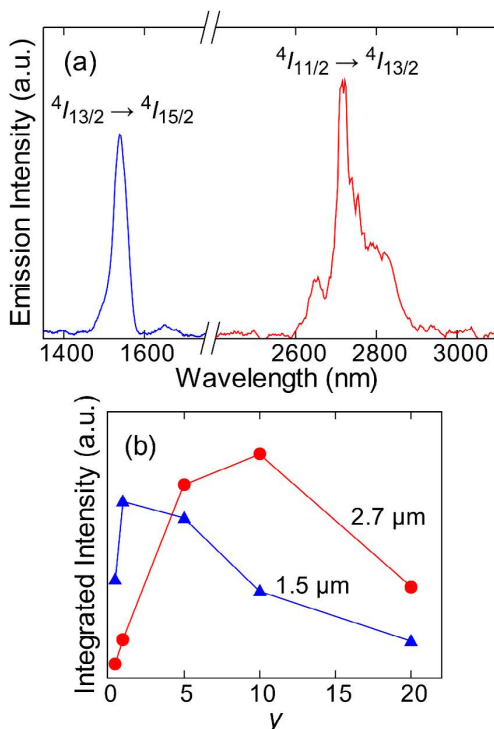


Fig. 10 (a) 10Er₂O₃-40La₂O₃-50Ga₂O₃ ガラスの発光スペクトル。(b) yEr₂O₃-(50-y)La₂O₃-50Ga₂O₃ ガラスにおける発光ピークの相対発光強度

- Mater. Express*, **4** (2014) 710–718. (doi: 10.1364/OME.4.000710).
- 4) K. Yoshimoto, A. Masuno, M. Ueda, H. Inoue, H. Yamamoto and T. Kawashima: *Sci. Rep.*, **7** (2017) 45600.
 - 5) K. Yoshimoto, A. Masuno, M. Ueda, H. Inoue, H. Yamamoto and T. Kawashima: *J. Am. Ceram. Soc.*, **101** (2018) 3328–3336.
 - 6) K. Yoshimoto, Y. Ezura, M. Ueda, A. Masuno and H. Inoue: *Adv. Opt. Mater.*, **6** (2018) 1701283.
 - 7) K. Fukumi and S. Sakka: *Phys. Chem. Glasses*, **29** (1988) 1–8.
 - 8) T. Honma, Y. Benino, T. Fujiwara, T. Komatsu, R. Sato and V. Dimitrov: *J. Appl. Phys.*, **91** (2002) 2942–2950.
 - 9) V. Dimitrov and S. Sakka: *J. Appl. Phys.*, **79** (1996) 1736–1740.
 - 10) V. Dimitrov and T. Komatsu: *J. Non-Cryst. Solids*, **249**, (1999) 160–179.
 - 11) 一般光学ガラスデータ. 光ガラス株式会社. 2019-04-01. <http://www.hikari-g.co.jp/products/catalog3.htm>
 - 12) S. Fujino, H. Takebe and K. Morinaga: *J. Am. Ceram. Soc.*, **78** (1995) 1179–1184.
 - 13) B. Srinivasan, E. Poppe, J. Tafoya and R. K. Jain: *Electron. Lett.*, **35** (1999) 1338–1340.

Additive 型 Roll to Roll 微細配線形成技術 に向けた光応答性表面処理材料の開発

川上雄介*

Development of photoresponsive material toward fine patterning technology by roll to roll, additive type of process

Yusuke KAWAKAMI*

一般的に電子機器に必要な微細配線を製造するには真空成膜技術・フォトリソグラフィ技術・エッチング技術が用いられる。これらは極めて高い精度と信頼がおける反面、全面成膜した材料を部分的に除去していく Subtractive (除去) 型生産技術である。さらに真空装置など大規模な設備投資が必要であり、また多くの工程で化学物質を消費するため環境負荷が大きい点でも課題があった。

本研究では簡便で低環境負荷な Additive 型配線形成技術の実現を目指し、光応答性表面処理材料の合成によって新たなプリントドエレクトロニクス・めっき配線技術を提案する。合成した光応答性表面処理材料は、金属触媒の捕捉性能、あるいは表面自由エネルギーなど、化学的・物理的特性を光によって制御することが可能になる。合成材料は材料利用効率が極めて高く、極少量の単分子膜相当を表面に加工するだけで様々なフィルム基板を光機能化することができ、またそのフィルム上では、露光部のみの位置選択的な配線が実現した。工程の最適化により、真空プロセス・フォトリソグラフィプロセス・エッチングプロセスのすべてを省略した真の Additive 型工程により $L/S=5/5\ \mu\text{m}$ の微細配線形成に成功した。

Generally, electronic devices require fine metal patterning with vacuum deposition, photolithography, and etching process. While these techniques provide extremely high accuracy and reliability, they are subtractive in nature and cause the removal of material from the substrate once deposited. These manufacturing techniques require large-scale capital investment, as several chemicals are consumed during these processes, leading to problems such as significant environmental impact.

In this research, for realizing simple and low environmental load additive wire form technology, we develop a photoresponsive surface treatment material and apply it to novel printed electronics and plating patterning technology. This synthesized material can control chemical and physical properties of the substrate such as the trapping ability of metal catalyst or surface free energy with photoirradiation. Synthetic materials have high material utilization efficiency, and it is possible to photo functionalize various film substrates by processing an exceedingly small amount of equivalent molecular film on the surface and on the film. This allows regioselective metal deposition on the exposed area to be realized.

We optimized the process and succeeded in forming a fine metal patterning of $L/S = 5/5\ \mu\text{m}$ using a true additive type of a process that eliminates the need for vacuum, photolithography and etching processes.

Key words 光パターニング, めっき, プリントドエレクトロニクス, アディティブプロセス, 有機合成 photopatterning, plating, printed electronics, additive process, organic synthesis

1 はじめに

近年、多様で高性能な電子機器の普及に伴い、薄型・軽量・フレキシブル性への要求も高まりつつある。特に重くて硬いガラス基板に代わってフィルム上に作製されたディスプレイや多様なウェアラブルデバイスが脚光を浴びている。

一般的にこのような電子機器に必要な微細配線を製造す

るには真空成膜技術・フォトリソグラフィ技術・エッチング技術が用いられる。これらは極めて高い精度と信頼がおける反面、全面に成膜した材料を部分的に除去していく Subtractive (除去) 型生産技術である。真空装置などの大規模設備投資を要し、多くの工程で化学物質を消費するため高環境負荷の面でも課題があった。また複数の薬液・高温工程のため、プラスチックフィルム基板の適用にも課題

* 研究開発本部 材料・要素技術研究所

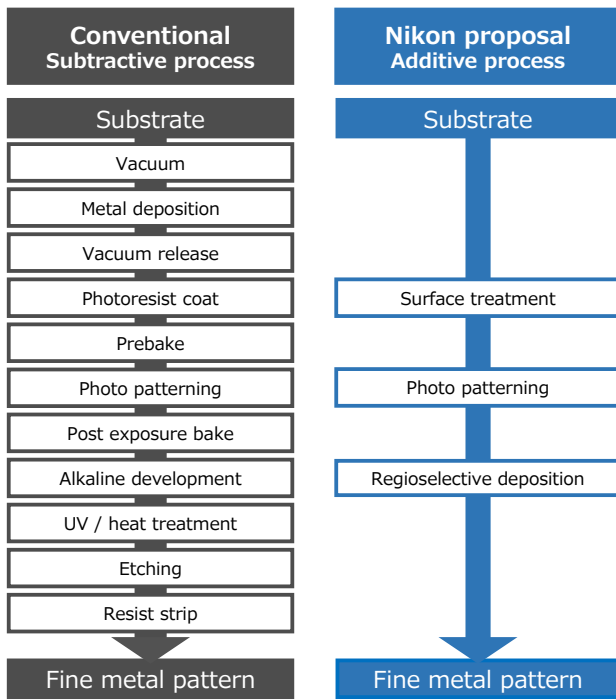


Fig. 1 従来工程と提案する Additive 工程の比較

があった。

当研究所では次世代露光技術開発の一環として、光応用 Additive (付加) 型配線形成技術の研究開発を進めている。本研究の目的は真空・フォトリソ・エッチングを用いない真の Additive 型生産技術の確立である。提案する製造工程を Fig. 1 右側に示した。

光が当たった部分のみに選択的に電子材料が積層される、このような光パターニング技術を確立できれば、Fig. 1 に示されるように、従来必要であった工程を大幅に省略でき、従来技術が抱える課題の克服に寄与できる。多くの材料廃棄や、設備投資、工数・要員を削減することで、環境面、経済面、両面でのエコプロセスが実現し、より多くの方がフォトパターニング技術を手にできると期待する。

我々は、提案技術に実現に向けた光応答性表面処理材料の合成と工程開発によって $L/S=5\ \mu\text{m}$ 以下の微細配線形成に成功した。本稿では我々の取り組みについて報告する。

2 課題とアプローチ

実用化されている Additive 型生産技術として、プリントドエレクトロニクス¹⁾がある。必要な所に必要な材料だけを塗布する材料利用効率の高い手法である。しかし形状や大きさ、精度は印刷版に制限され、積層時の重ね合わせ精度には課題があり、フィルムなどの著しい歪みへの追従は難しい。一方、直描露光技術を用いる場合には高い配線精度だけでなく、積層する際のアライメント精度や、メートル級の長尺配線への応用も可能²⁾である。

印刷以外の真空を用いない Additive 型配線形成手法とし

て、無電解めっき法が知られる。先行研究では NIR, DUV³⁾を用い露光部のめっき下地膜を失活させる手法がある。DUVを適用する場合、レチクル・縮小露光光学系への Haze 発生の課題があり、簡易で低コスト製造への適用は避けたい。i 線対応のフォトリソを用いれば、脱真空工程で容易に線幅 $5\ \mu\text{m}$ 以下の微細配線形成が実現する。このめっき手法は Full-Additive 法と呼ばれるが、実際には現像やレジスト剥離あるいは部分エッチングなどの Subtractive 工程に依存した技術である。

ここで提案する Additive 工程の実現においては、フレキシブルデバイスへの適用に向け、劇的な工数削減と低温化に加え、 μm サイズの描画を目指した i 線領域での直描フォトパターニングへの対応と、印刷技術に匹敵する量産性を期待した光応用 RtoR 製造技術への対応を目指す。

例えば先述の無電解めっきを用いれば、表面電荷制御のみで選択的な金属配線が可能と考える。具体的にはめっきの触媒となるパラジウム (Pd) を捕捉できるような表面を光パターニングすることで、レジストフリー配線工程の実現を提案する。

あるいは選択的にインクが付着する表面を光パターニングすることで、有版印刷の課題を克服したプリントドエレクトロニクスを提案する。輪転型平版印刷技術を応用した迅速で高精度な印刷による配線工程の実現を図る。

これらを実現する光応答性材料について、従来の i 線用光パターニング材料では、ある程度の膜厚が必要となり除去工程が必要だった。今回我々は分子レベルの表面処理で十分な機能が発現する光応答性表面処理材料の合成によって、材料利用効率の高い Additive 型技術の実現を目指した。

3 めっき配線技術と触媒捕捉性の光制御

無電解めっきにおいてはめっき触媒として知られる金属 Pd をパターニングできればよい。基板上で金属 Pd を選択的に捕捉することができれば Fig. 2 に示すように基板表面で次亜リン酸が酸化され放出された電子がニッケルイオンを還元する。すなわち選択的な Pd の捕捉が選択めっきを可能にする。Pd 捕捉能を有する代表的な化学構造としてア

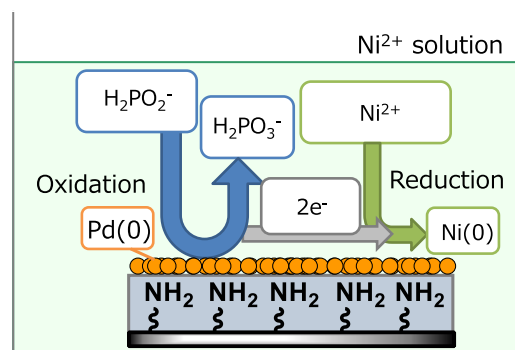


Fig. 2 無電解めっきの金属析出機構

ミノ基がある。

光選択的なアミン生成のため光応答性保護基³⁾の導入を検討した。光応答性保護基が導入された分子は、露光前は化学的に不活性だが、露光することで化学的に活性な分子構造となる。本研究ではアミノ基による触媒の捕捉能の発現を光でスイッチングする。i 線への応答性を付与させるため保護基としてジメトキシニトロベンジルカルバメートを採用した光応答性アミン発生型シランカップリング剤 (NBC-APTAMOS) を分子設計した。アルコキシシリル基を適用することで基板上でのアミノ基および触媒・めっきの密着性が期待される⁴⁾。

NBC-APTAMOS の分子構造と露光による光反応機構⁵⁾を Fig. 3 に示した。NBC-APTAMOS は複雑な組成を必要とせず、光応答性・潜在的な金属捕捉性・基板への密着性などの機能を 1 つの分子が果たす。露光後はめっきの触媒を捕捉するアミノシラン: APTMOS を生成するスキームである。

NBC-APTAMOS はアミンあるいはイソシアネート化合物を用いた一般的な縮合法で合成でき、クロマトグラフィや再結晶等で NMR 純度 99.8% まで高純度化できる。合成した NBC-APTAMOS の分子サイズおよび分光分析による光反応特性の解析を行った。結果を Fig. 4 に示す。Molecular Mechanics 法による計算結果から分子長は 0.5~1.7 nm であり、単分子膜での表面分子密度は数 moles/cm² と見込まれる (Fig. 4 (a))。光反応性保護基の最大吸収波長は 350 nm にあり、光照射による吸収ピークの減衰から、光反応の進行を確認できた (Fig. 4 (b))。また定量的な光反応効率については NMR (核磁気共鳴法) を用い光応答性保護基に由来する化学シフト (7.7 ppm) の減衰 (Fig. 4 (c)) から露光量によって進行する光反応率を解析した。合成材料は光照射で容易に脱保護され、4500 mJ/cm² 照射後は保護基に由来するピークが消失することを確認した。また 300 mJ/cm² 照射で 18%、900 mJ/cm² 照射で 55% が脱保護される反応率であることから、約 2000 mJ/cm² での反応完了が示唆された (Fig. 4 (d))。

次に NBC-APTAMOS を基板上に成膜した光応答性フィルムを作製した。表面処理には浸漬法、スピコート法、ダイコート法など、一般的なウェット成膜法を適用できる。XRR (X線反射率法)、UV を用いて、スピコート膜 (3000 rpm, 30 sec) の膜厚・分子密度を解析⁶⁾したところ、膜厚 > 1.4 nm、分子密度 > 3 moles/cm² と単分子相当の機能性表面を作製できていることを確認した。NBC-APTAMOS を表面処理した基板に対し、Pd 触媒捕捉能および無電解めっきによる選択めっきの検証を行った。

基板表面の光反応性および、Pd の捕捉性能を評価するため露光前後及び触媒溶液への浸漬前後の基板に対して TOF-SIMS (飛行時間型質量分析法) による評価を行った。NBC-APTAMOS に導入された光応答性保護基 (PG) はフラ

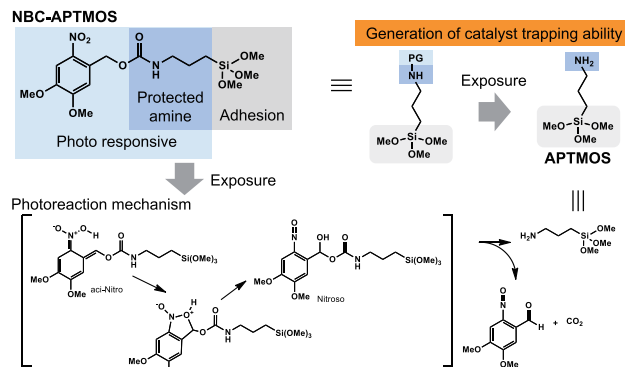


Fig. 3 光応答性表面処理剤

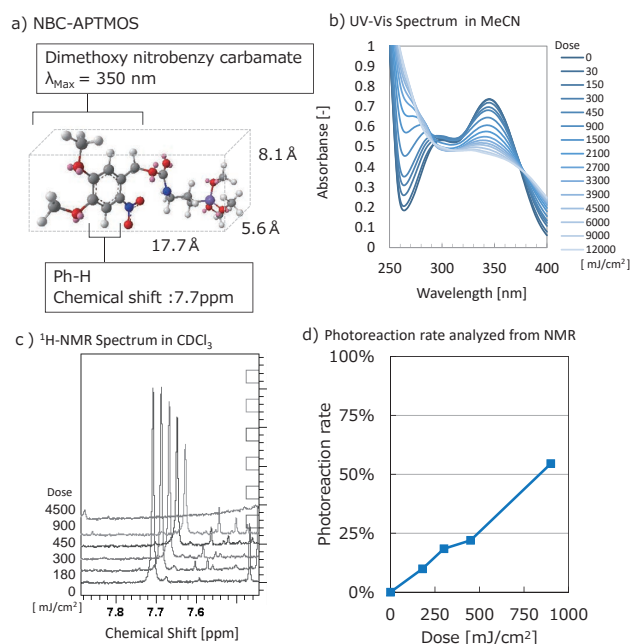


Fig. 4 NBC-APTAMOS と光反応特性

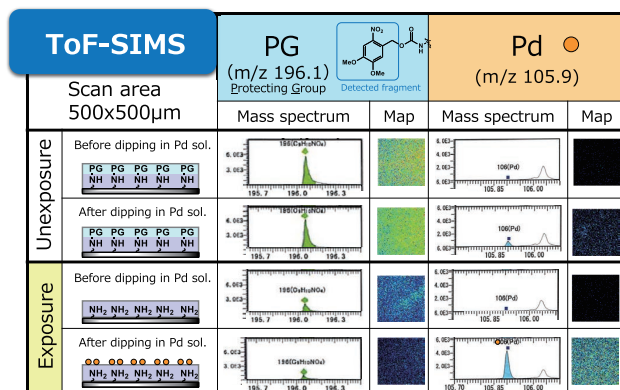


Fig. 5 ToF-SIMS によるマッピング結果

グメントイオン m/z=196.1 として、触媒である Pd は m/z=105.9 として観測される。それぞれの MS ピークおよび、マッピング結果を Fig. 5 に示した。

保護基 PG は露光前 (上 2 段) には十分検出されていたが露光後 (下 2 段) には検出量が著しく減少しており、基板上での光反応による分子構造変化を確認できた。また Pd 浴に浸漬した未露光の基板に対し、露光後の基板上では Pd

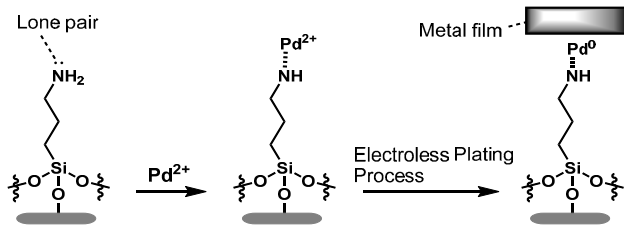


Fig. 6 アミノ基のPd捕捉機構

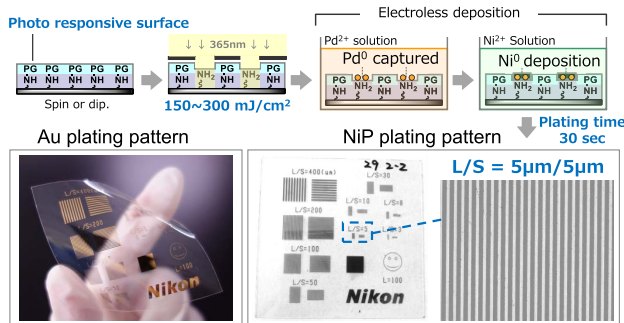


Fig. 7 PETフィルム上での光応用めっきパターン

が多く存在した。これらはNBC-APTAMOSが光パターンニングによって露光部分のみにアミンを生成しPd触媒を捕捉する光選択性の触媒捕捉力を発現したことを示している。

アミンのPd触媒捕捉機構であるが、アミノ基は窒素上の非共有電子対を有するために強力な電子供与基として知られる⁷⁾。この特性は、遷移金属に対する強い配位性を示すため、Fig. 6のようにPdが錯化した状態で捕捉されることが、主な捕捉機構と考えられる。

このような構造のPdには触媒活性がないことが知られているが、本検討ではこの錯化したPdによりニッケルめっき膜の析出を確認できている。この要因としては錯形成に伴わずかに捕捉された金属PdまたPdクラスターが触媒活性を有しめっき浴に含まれる還元剤からの電子放出を促すため、錯化したPdはニッケルめっき浴中でさらに還元され触媒活性を発現したものと考察している。そのため触媒付与工程後の還元処理を必要としない簡便なめっき工程を確立できた。

実際に検証しためっき工程の概要とPETフィルム上に描画したLine and Space = 400 µm ~ 3 µmの解像性評価結果を示した (Fig. 7)。

光応答性基板は単分子相当の膜厚・分子密度でも光応答性と触媒捕捉能を示し 300 mJ/cm²以下の露光量でも、無電解めっきによる微細な金属配線形成を実現した。NBC-APTAMOSは有機無機問わずガラス・フィルムなどあらゆる基板を光機能化でき、無電解めっきによる様々な金属配線を可能とする。例えばPETフィルム上での置換金めっき等を行えば、透明・軽量なだけでなく、耐食性・柔軟性・導電性に優れた金のめっきパターン (Fig. 7左下)を得ることができる。

本手法は、数分間のめっき時間で配線描画でき良好な生産性であることを確認した。加熱工程は洗浄後の乾燥温度、あるいはめっき (浴温度約70℃以下)であり、安価なPETフィルム上での低温工程が実現する。なおRoll to Roll直描露光装置を用いた検証にも成功しており、高い生産性が期待できる。

4 印刷配線技術とインク反発性の光制御

ここまでの知見を活かし、印刷技術への応用を検討した。印刷はRtoR製造技術の歴史が長く、ロール紙を用いた輪転印刷機が広く普及している。特に平版印刷は低コストのため多量少量印刷に対応でき、20 m/secを越える超高速印刷が可能のため新聞などの大量生産にも対応できる。この経済性と生産性に優れた印刷技術を我々の提案するプロセスに適用することを試みた。平版印刷用の版は樹脂とアルミ⁸⁾、あるいはPDMS⁹⁾など、インク付着力が異なる膜がパターンニングされ、インクが塗分けられることで、印画紙に転写される。すなわち本検討ではフィルム基板自体に異なるインク付着力を示す表面を光パターンニングできれば、露光部への選択的な材料成膜が期待できる。

インク付着力に影響する表面自由エネルギー (SFE) γ を光で制御可能な表面処理材料として2つのフッ素化された撥液性官能基を導入したFNBC-APTEOSを設計した。フィルム基板をこの分子で光機能化することで未露光部はインク反発性を示し、光照射により親液化され露光部のみを選択的なインキングが期待できる。設計した分子構造から見積もられるLog P_{o/w} (オクタノール水分配係数)は露光後9.6 → 0.9と顕著に変化し、十分なSFE変化が期待できた。

実際にFNBC-APTEOSを合成・高純度化し、基板への機能性付与を試みた。LCMSで解析した光反応の進行に伴い光機能化した基板の水接触角が低下し、光によるSFE制御が可能であることを確認できた (Fig. 8)。2000 mJ/cm²照射後、光反応は完了し、PETフィルム上において接触角は118.8 → 56.8°まで変化した。なお接触角 ≤ 90°とすることでインクの付着力を発現した。成膜条件の最適化でガラスやフィルム基板への緻密な表面処理に成功し、めっき用のNBCと同様単分子膜相当でも十分に機能することを確認した。

次に表面処理したPET基板を光パターンニングし、SFEの異なるインクを印刷した結果をFig. 9に示した。基板のSFEは、フッ素が存在する露光前は $\gamma=22.4$ mJ/m²、露光後はアミノ化され $\gamma=44.2$ mJ/m²となる。この表面に対しSFEに近いインクの場合、同様の濡れ特性を期待されるが、SFEだけでは説明できない印刷精度の差異が生じた。そこで露光前後の表面と各インクのSFEに対してKaelble Uy, Owens/Wendt理論式に基づき成分分離による解析¹⁰⁾を試みた。Fig. 9のプロットにラベルした値はSFEを示し横軸

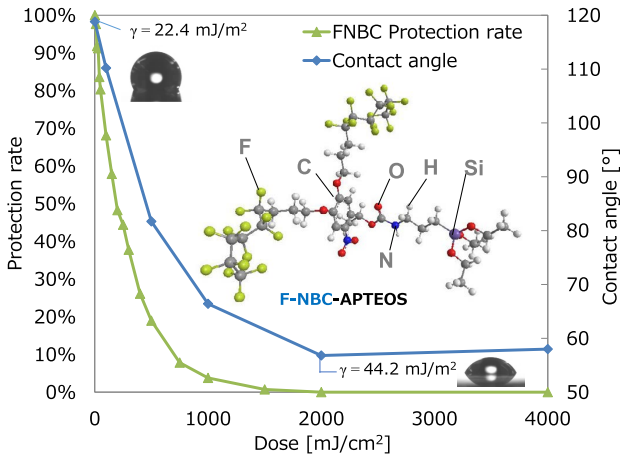


Fig. 8 FNBC-APTEOS と光反応特性

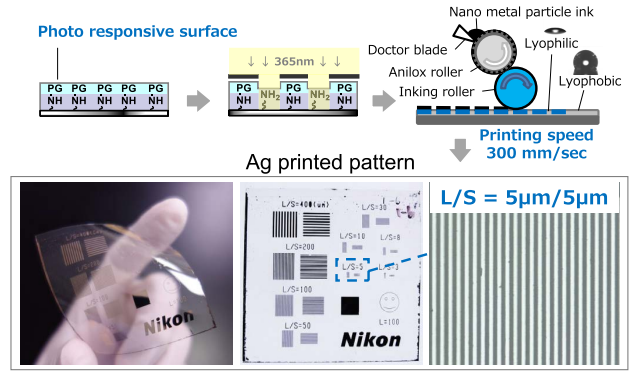


Fig. 10 PET フィルム上での光応用印刷パターン

された黒色液体である。インク内の金属はナノ分散により低融点化され、溶剤の乾燥に伴い、粒子同士が速やかに融着される。室温～150℃程度の低温焼結によって金属光沢を発生し、高い導電性を示すことを確認した。

本手法では、光パターニング技術と輪転印刷を組み合わせることで、精細性と迅速性を両立した新たなプリントドエレクトロニクス技術が実現した。輪転機を用いて基板全面にインキングを行い、版の役割は光パターニングした基板自体が担う。これにより、露光部のみを選択的なインク塗布が可能となり、印刷版に制限されない無限長のパターンや、直描露光技術を用いることで高いアライメント精度に対応することが期待できる。従来の輪転印刷で必要だった製版工程（Subtractive 工程）を必要としないため少量多品種製造への対応にも期待できる。

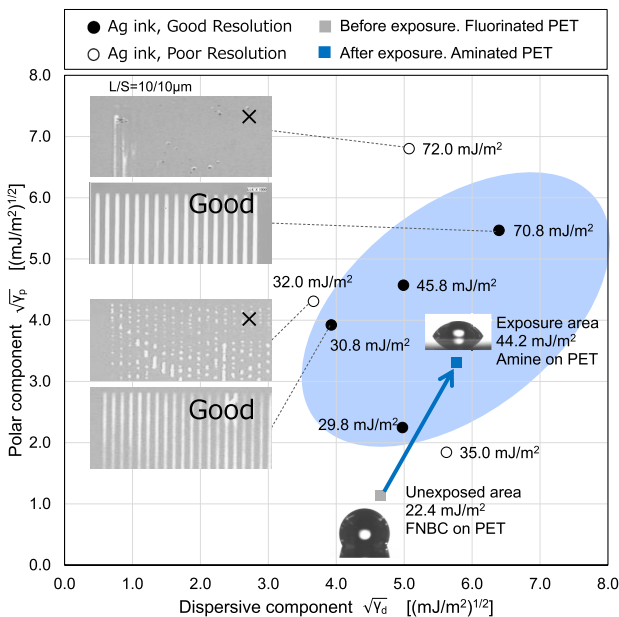


Fig. 9 インク・基板のSFE成分分離結果

はその分散成分の平方根 $\sqrt{\gamma^d}$ 、縦軸は水素結合性を含む極性成分の平方根 $\sqrt{\gamma^p}$ を示す。SFEが同程度のインクであっても解像性が大きく異なり、黒丸でプロットしたインクは良好な解像性を示した。それらインクのSFE成分($\sqrt{\gamma^d}$, $\sqrt{\gamma^p}$)は、露光後にアミノ化したPET表面のSFE成分($\sqrt{\gamma^d}$, $\sqrt{\gamma^p}$)と近く、いずれのインクも青い円の中に分布することが分かった。

SFEおよびその成分分離結果を指標に45.8 mJ/m²のインクを選定し、印刷機構の最適化を図った。簡単な一本ローラーでインキングした場合、インク量制御が難しいが、Fig. 10のようにアニロックスローラー・インキングローラー・ドクターブレードの機構を持つ印刷機であれば、再現性が向上し、良好な解像性で印刷パターンを得ることができた。本検証では印刷速度300 mm/secでのL/S=5 µmの微細配線に成功しており、高い生産性を確認できた。

なお今回用いたナノメタルインクはAgナノ粒子が分散

5 まとめ

本研究では、露光部への直接配線描画という革新的な光応用技術と、それを実現するユニークな光応答性表面処理材料を提案した。めっき・印刷に適したこれら材料は1分子相当の厚さで化学的・物理的特性を十分に発現可能であるため、材料の利用効率は極めて高い。光パターニングした表面に対し、めっき・印刷材料を必要な部分にのみ成膜することに成功した。

本研究の成果は真空プロセス・フォトリソグラフィプロセス・エッチングプロセスのすべてを省略でき、工数削減や製造装置の投資コスト削減に大きく貢献できる。極めて簡便でありながら高精細かつ低環境負荷を実現する次世代Additive型生産技術の可能性を示している。

本技術の実用化には、本生産技術に適しためっき液・インク材料、その工程の最適化が必要と考えており、今後も材料・工程開発を継続し、真のAdditive型生産技術の確立に努めたい。

6 謝 辞

本研究開発において、ご支援ご指導いただいた方々、本材料の開発及び評価・探求にご協力いただいた全ての方に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) M. Berggren, D. Nilsson and N. D. Robinson: *Nature Materials*, **6** (2007) 3-5.
- 2) Y. Kito, M. Hori, Y. Hayashida, T. Suzuki, H. Komiyama, T. Watanabe, T. Kurashige, M. Kato and K. Nara: *Journal of SID*, **25** (2017) 411-420.
- 3) Walter J. Dressick and Jeffrey M. Calvert: *Jpn. J. Appl. Phys.* **32** (1993) 5829-5839.
- 4) Jamila Jennane, Tanya Boutros and Richard Giasson: *Canadian Journal of Chemistry*, **74** (1996) 2509-2517.
- 5) James F. Cameron and Jean M. J. Frechet: *J. Am. Chem. Soc.* **113** (1993) 4303-4313.
- 6) Frank Caruso, Dirk G. Kurth, Dirk Volkmer, Michael J. Koop and Achim Müller: *Langmuir*, **14** (1998) 3462-3465.
- 7) Lina Xu, Jianhui Liao, Lan Huang, Danlin Ou, Zhirui Guo, Haiqian Zhang, Cunwang Ge, Ning Gu and Juzheng Liu: *Thin Solid Films*, **434** (2003) 121-125.
- 8) A. Nagashima: *Journal of Printing Science and Technology*, **40** (2002) 33-37.
- 9) Veronique Lanet and Alessandro Gandini: *TAGA Proc (Tech Assoc Graphic Arts)*, **2** (1995) 1182-1193.
- 10) M. Saito, M. Hayashi and A. Yabe: *Journal of Japan Oil Chemists Society*, **28** (1979) 328-333.

深層畳込みニューラルネットワークを用いた電子顕微鏡画像スタックにおける細胞セグメンテーションの実用的方法

小西功記*, 三村正文*, 野中崇雄**, 佐瀬一郎***, 西岡秀夫****, 須賀三雄****

Practical method of cell volume segmentation in electron microscope image stack using deep convolutional neural network

Kohki KONISHI*, Masafumi MIMURA*, Takao NONAKA**, Ichiro SASE***, Hideo NISHIOKA**** and Mitsuo SUGA****

生物組織などの連続した電子顕微鏡 (SEM, TEM) 画像のスタックから、三次元再構築し、目的の構造物を抽出すること (セグメンテーション) は、構造に対する専門の知識と時間のかかる作業である。畳込みニューラルネットワーク (CNN) は、セグメンテーションの作業を自動的に行うことを目的に使用されているが、大量の学習データセットと高性能のコンピューターが必要であることが大きなボトルネックである。この課題を解決するために、我々は最小限の学習データを用いて目的の構造物を抽出できるように CNN を改良した。我々はマウス小脳の連続 SEM 画像から10枚の学習データセットを作成し、これを用いて細胞膜確率マップを推定した。これを利用して2労働日弱 (手作業9時間) でプルキンエ細胞の樹状突起の細胞膜を抽出できた。この手法は、少量の学習データの作成のみで可能であり、計算時間も短くすることができるので従来手法よりも作業時間を大幅に減少させることができた。さらに同一の細胞膜確率マップを用いてプルキンエ細胞近傍の軸索突起やグリア細胞等の細胞膜を短時間で効率よくセグメンテーションすることができた。この手法は、少数の学習データセットを用いた、目的構造物の抽出作業効率化手法であると結論づけた。

Segmentation of three-dimensional electron microscopy image stacks is an arduous and tedious task. Deep convolutional neural networks work well to automate the segmentation; however, they require a large training dataset, which is a major impediment. In order to solve this issue, especially for sparse segmentation, we used a CNN with a minimal training dataset of cell membrane. We applied our CNN model to create membrane probability map. We then segmented a Cerebellar Purkinje cell from an image stack of a mouse Cerebellum cortex in less than two working days, which is much shorter than that of the conventional method. We further segmented several cells close to the Purkinje cell by utilizing the same membrane probability map as used to segment the Purkinje cell. Assisted by the probability map, segmentation process was more efficient than manual segmentation method. We concluded that we can reduce the total labor time for the sparse segmentation by reducing the training dataset.

Key words 画像セグメンテーション, マウス小脳, 畳込みニューラルネットワーク, 電子顕微鏡三次元画像
image segmentation, mouse Cerebellar cortex, deep convolutional neural network, electron microscopy image stack

1 はじめに

生物組織などの連続した電子顕微鏡 (SEM, TEM) の画像スタックを三次元再構築し、そこから目的物の三次元構造を抽出すること (セグメンテーション) は、目的の構造の理解、また目的構造とその近傍構造との空間的な位置関

係理解のために不可欠である。一般的な明暗調整や画像処理を用いた手法では生物組織画像などからの目的構造抽出はうまくできないことが多いため、手動でのセグメンテーションが広く受け入れられており、いくつかのツールが提供されている (Reconstruct¹⁾ など)。しかし、このようなツールを使用した手動のセグメンテーションは、連続切片

* 研究開発本部 数理技術研究所

** 光学本部 第一開発部

*** ヘルスケア事業部 技術統括部 システム開発部

**** 日本電子株式会社

画像の大きさと枚数が増えるほど時間がかかり、面倒である。そこで、機械学習を使用した自動セグメンテーション手法が研究されてきた（例：ilastik²⁾, TrakEM2³⁾, Microscopy Image Browser⁴⁾）。

畳込みニューラルネットワーク（CNN）は、動物の視野を構成するニューロンの配置をヒントにして設計されたネットワークであり⁵⁾、セグメンテーションなどのパターン認識に適している。神経系の接続全体をマッピングするコネクトームでは、学習データと計算機を豊富に用意してCNNを用いて細胞形態を学習し、セグメンテーションを行っている⁶⁾。

セグメンテーションの手法は、学習データセットの作成、学習、適用、校正、三次元再構築の5つのプロセスから構成される。

この学習を行うためには学習データセットが必要である。学習データセットとは、撮影画像そのものと、この画像から目的構造物を抽出した正解画像のペアからなる。例えば、細胞膜を学習させたい場合、細胞膜の領域を含んだ画像とその画像の各ピクセル毎に細胞膜領域とそれ以外の部分を示す2値化された画像（正解画像）のペアを作成する。学習とは、学習データセットを用いてアーキテクチャを学習させ、学習済みモデルを出力させるプロセスである。適用は、撮影画像を学習済みモデルに入力し、細胞膜の確率マップを出力するプロセスである。校正は、元画像と閾値処理した細胞膜の確率マップとを比較することで、偽陽性と偽陰性領域を同定し修正するプロセスである。三次元再構築は、異なる切片にある同じ細胞に同じラベルを付けるプロセスである。

Januszewskiらはキンカチウ脳の連続電子顕微鏡画像のセグメンテーションにおいて平均エラーフリー神経突起経路長1.1 mmを達成した⁷⁾。これを達成するために、手動でセグメンテーションし、148メガボクセルの学習データセットと32のグラフィックスプロセッシングユニット（GPU）を使用している。しかし、彼らが使用した大量の学習用データセットを準備でき、かつ潤沢な計算機資源を持つことのできるラボは一般的ではない。少ない学習データと一般的な（安価な）計算機のみで、細胞やオルガネラの形態をセグメンテーションできれば、一般的なラボでもこの技術を使用でき、生物の三次元形態の理解を進める役に立つだろう。そこで我々は、マウスの小脳の分子層の連続電子顕微鏡画像の細胞膜を手動でセグメンテーションして10メガボクセルの学習データセットを作成し、細胞膜の特徴を学習させることにより、細胞膜の確率マップを推定した。このマップを用いてのプルキンエ細胞の樹状突起のセグメンテーションでは、総作業時間が従来法と比べて大幅に短縮できることを報告した⁸⁾。本稿では追加事例を含めて提案手法を紹介する。

2 手法

(1) 試料の作成

深麻酔後、成体マウスを0.1 mol/l カコジル酸緩衝2% グルタルアルデヒド（pH 7.5）で灌流固定した。続いて小脳を摘出し、同じ固定液で2時間浸漬固定した。その後0.1 mol/l カコジル酸緩衝1% OsO₄（pH 7.5）で2時間後固定した。標本を段階的にエタノールで脱水し、エポキシ樹脂に包埋した。

包埋した試料はウルトラミクロトーム（Leica EM UC7; Germany）により連続超薄切片を作製した。切片厚の設定値は45 nmである。切削した切片をシリコン基板片に載せ、酢酸ウランとレイノルドのクエン酸鉛により2重染色した。

(2) 連続SEM像の撮影

上記連続切片は、アレイトモグラフィ⁹⁾用のカスタムソフトウェアを備えた2つの走査型電子顕微鏡（SEM）、JSM-7800FとJSM-7900Fを用いて自動撮影した。ピクセルサイズは6 nm、画像サイズは5120×3840ピクセルである。加速電圧は7 kV、検出器は後方散乱電子（BSE）検出器を用いて、連続超薄切片97枚の連続SEM像を取得した。連続SEM像間の位置合わせは、Fijiのプラグインであるlinear stack alignment with the SIFTを使用した。続いて小脳のプルキンエ細胞の樹状突起を含んだ領域を2048×2048ピクセルでトリミングした。

(3) セグメンテーションの提案手法

我々の提案手法も学習データセットの作成、学習、適用、校正、三次元再構築の5つのプロセスから構成される。

学習データセットの作成

上記、2048×2048の元画像97枚の中央部分の1024×1024領域を切り出し、ここから10枚を選択し細胞膜部分を手動で塗り分け2値化画像を作成し、学習データセットを作成した。この10枚は、細胞膜の様々なテクスチャパターンと典型的なテクスチャパターンを含むように選択した（切片番号：1, 2, 3, 4, 5, 10, 30, 50, 70, 90）。テクスチャは連続切片間で類似しており、切片が離れるにつれて画像の変化が大きくなると仮定している。作成した学習データセットは、従来法⁵⁾の1/10である。

学習

学習には、学習データセットが少ないため、データ拡張を行った。各画像に回転（0°, 90°, 180°, 270°）と反転（垂直反転、水平反転、反転なし）、弾性変形¹⁰⁾を加えることにより、学習データサイズを16倍まで拡張させた。弾性変形は、画像内のいくつかの点を選択し、それらの点をある程度ランダムな方向に動かしたのち、残りのピクセルを補間する変形である。我々はエンコーダ・デコーダタイプ

のセグメンテーションアーキテクチャ U-Net¹¹⁾ を学習に用いたが、学習データサイズが小さくても過学習しにくくするために畳込み層数やプーリング層数を減らしている。

学習部の実装：学習部の実装には Caffe フレームワーク¹²⁾ を用いた。最適化には確率的勾配降下法ソルバーである ADAM¹³⁾ を使用した。初期学習率、第1と第2の減衰率、重み減衰率はそれぞれ $1e-4$, 0.9 , 0.99 , $4e-3$ とした。学習率は反復計算の間中、固定した。計算を高速化するため GPU を1枚 (NVIDIA GeForce GTX 1080) だけ使用した。

適用

適用は、小脳プルキンエ細胞の樹状突起を含んだ領域 (2048×2048 ピクセル) 97枚をそれぞれ学習済みモデルに入力し、細胞膜確率マップを97枚出力した。推定は、文献¹⁴⁾ に倣い、入力画像をデータ拡張して行い、その平均出力を細胞膜確率マップとした。

校正と三次元再構築

適用の結果出力された97枚の細胞膜の確率マップと元の SEM 画像を比較し、目的のプルキンエ細胞の樹状突起の細胞膜、それを覆うグリア細胞の細胞膜、周辺の軸索の細胞膜などの偽陽性と偽陰性領域を手動で修正しセグメンテーションを行った。

(4) セグメンテーションツール

我々は、上記の5つのプロセスをすべてオールインワンで実施可能なセグメンテーションツールを開発した。本ツールは一般的な (ゲーム用途の) GPU を搭載した Windows OS で動作する。また、誰でも簡単に深層学習を用いたセグメンテーションができるように、独自のグラフィカルユーザーインターフェース (GUI) を持っている。Fig. 1 に我々が開発したセグメンテーションツールを用い

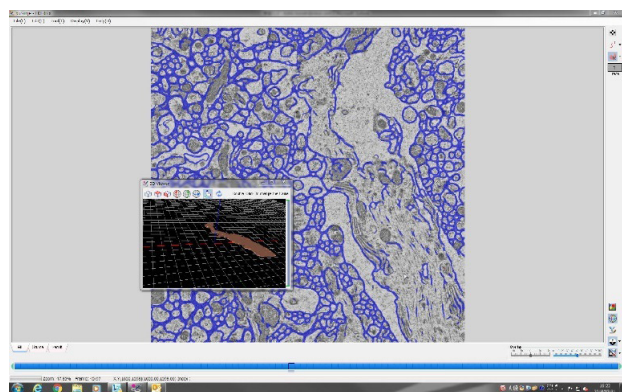


Fig. 1 深層学習を用いたセグメンテーションツール

学習データセットの作成、学習、適用、校正、三次元再構築の各プロセスを本ツールを用いて実行できる。Fig. 1 は細胞膜の推定結果の校正とプルキンエ細胞の樹状突起の三次元構築中を示すスクリーンショットである。本ツールは GPU を搭載した Windows OS で動作する。

た本実験の様子を示す。

3 実験

我々は開発したツールを用いて小脳のプルキンエ細胞の樹状突起をセグメンテーションし、各セグメンテーションプロセス (学習データセットの作成、学習、適用、校正、三次元再構築) に要した時間を記録した。さらに提案手法に要した時間評価を、2つの既存セグメンテーション法と比較した。1つは全手動でセグメンテーションを行う方法 (以下、Method 1)、もう1つは従来の機械学習セグメンテーション法 (以下、Method 2⁵⁾) である。全手動法は、プルキンエ細胞の樹状突起の細胞膜を全手動でトレーシングし、樹状突起の細胞質全体に同じ色を塗った。Method 2 は、学習データセットを100枚とした以外は、提案手法と同じである。学習データセットのサイズは提案手法の10倍となる。各プロセスにかかった時間を記録する。

4 結果と考察

出力された細胞膜の確率マップの一例を Fig. 2 に示す。結果を SEM 画像と見比べると、誤検出がみられる。細胞膜の一部が未検出な領域や、本来繋がっていない細胞膜同士が繋がっている例もあった (Fig. 3)。Fig. 3 は、Fig. 2 の

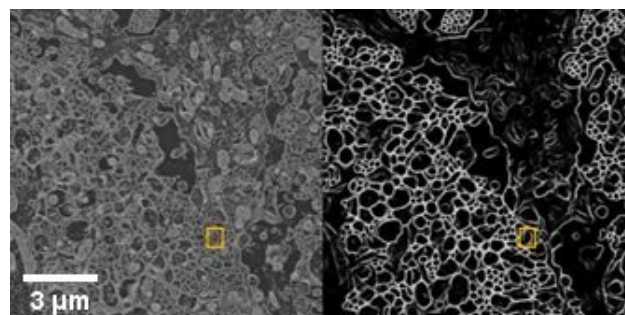


Fig. 2 SEM 画像 (左) と細胞膜の確率マップ (右)

図中に示したオレンジ色のボックス領域は、誤結合と誤分割領域の例である。Fig. 2 は許可を得た上で転載 (文献⁸⁾)、copyright 2019 Oxford Academic.

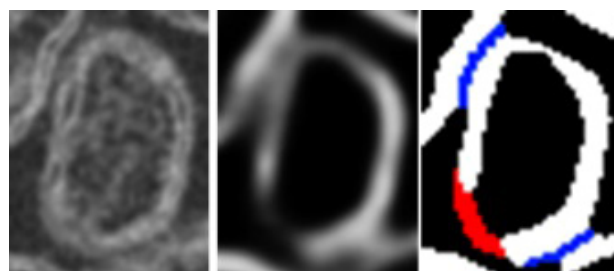


Fig. 3 校正の例

Fig. 2 のオレンジ色のボックス領域の拡大 Fig. (左)、細胞膜の確率マップ (中央)、校正結果 (右)。右 Fig. の黒、白、青、赤は、それぞれ真陰性、真陽性、偽陽性、偽陰性領域を示す。Fig. 3 は許可を得た上で転載 (文献⁸⁾)、copyright 2019 Oxford Academic.

オレンジ色のボックス領域の拡大像である。Fig. 3 左は元の SEM 画像，Fig. 3 中央は対応する細胞膜の確率マップ，Fig. 3 右は校正結果例である。Fig. 3 右の黒，白，青，赤は，それぞれ，真陰性（細胞膜がないと判定），真陽性（細胞膜があると判定），偽陽性（細胞膜がないのにあると判定），偽陰性（細胞膜があるのにないと判定）と評価した領域である。

この結果は，学習データセットが少なく，かつ学習アーキテクチャの表現能力を制限して計算時間を短くしたため，誤検出が増えたためと考えられる。しかし，誤検出の校正は比較的簡単なので全手動で行うセグメンテーションと比べるとはるかに省力化できたと考えられる。

Fig. 4 に切片番号71のコントラスト反転した SEM 画像（左）と，小脳のプルキンエ細胞の樹状突起のセグメンテーション結果（右）を示す。

Table 1 と Fig. 5 で，今回の提案手法と2つの既存手法（Method 1, 2）の手作業にかかった時間を比較した。既存手法の1つは完全に手作業による手法（Method 1）であり，もう1つは CNN を用いた従来手法（Method 2, 学習データセット100枚）である。提案手法の各プロセスの手作業時間を測定した結果，細胞膜のトレーシング（Fig. 5 の青部分），校正（Fig. 5 の赤部分），三次元再構築（Fig. 5 の緑部分）にそれぞれ約150分，250分，50分を要した。これらの結果をもとに，Method 1 と Method 2 を実施した場合の作

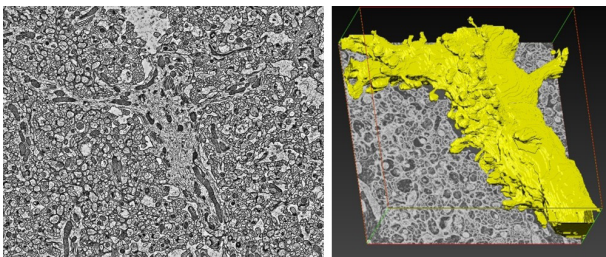


Fig. 4 SEM 像（左，コントラスト反転）と小脳分子層のプルキンエ細胞樹状突起のセグメンテーション結果（右，黄色） Fig. 4 は許可を得た上で変更して転載（文献⁸⁾），copyright 2019 Oxford Academic.

業時間を推定した。推定の詳細は Table 1 のキャプションに記載している。学習データサイズが小さいため校正時間は増加したものの，提案手法は従来手法⁵⁾と比較して総手動セグメンテーション時間を70%短縮した。

我々が開発したセグメンテーションツールは，確率マップを元画像の上にかぶせる機能があり，トレーシング補助として使用できるため，手動セグメンテーションと比べると画像の校正が簡単にできる。この機能を利用し，同じ細胞膜の確率マップを用いて，プルキンエ細胞近傍の軸索突起やグリア細胞等のセグメンテーションを実施した。Fig. 6 に樹状突起（灰色），軸索（青色と緑色），シナプス結合部（赤色），グリア細胞（ピンク色）のセグメンテーション結果を追加で示す。この確率マップは，画像内の他の細胞のセグメンテーションに利用できることが分かる。

我々はマウスの小脳の細胞膜の特徴を CNN アーキテクチャに学習させることでプルキンエ細胞の樹状突起のセグメンテーションを実施した。もしマウス小脳の細胞膜に類似した公開データがあれば，転移学習を用いたセグメンテーションが可能かもしれない。ISBI 2013 EM challenge の SNEMI 三次元データセット¹⁵⁾ はマウス大脳皮質の連続

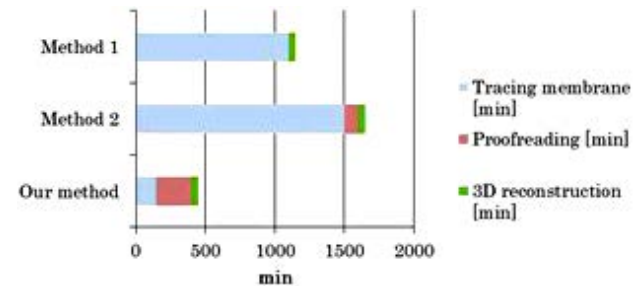


Fig. 5 従来手法との手作業時間比較

提案手法（Our method）を従来手法1（完全手作業によるセグメンテーション手法；Method 1）と従来手法2（CNNを用いた従来手法によるセグメンテーション手法；Method 2）と比較した。三次元再構築までの総作業時間は，学習データセットを減らすことによって短縮されることが分かる。Fig. 5 は許可を得た上で変更して転載（文献⁸⁾），copyright 2019 Oxford Academic.

Table 1 提案手法と従来手法の手作業時間比較

	膜トレーシング (分) (Tracing membrane (min))	校正 (分) (Proofreading (min))	3D再構築 (分) (3D reconstruction (min))	総作業時間 (h)
提案手法 (Our method)	150	250	50	9
手法1 (Method 1)	1,100*1	0	50*4	20
手法2 (Method 2)	1,500*2	100*3	50*4	28

提案手法の各プロセスの手作業時間を測定した。手法2では，細胞膜のトレーシング時間は学習データセット作成時間に対応する。手法1と2での作業時間推定は次の通り。我々の学習データセットと小脳プルキンエ細胞データの膜ピクセル数を比較したところプルキンエ細胞膜のピクセル数は7.3倍であったため，手法1の膜トレーシング作業時間は $150 \times 7.3 = 1,100$ 分と推定した。ISBI 2013 EM challenge のデータセットサイズは我々の学習データセットサイズの10倍大きいので，手法2の膜トレーシング作業時間は $150 \times 10 = 1,500$ 分と推定した。手法2における校正のための作業時間は，各画像に1分を要すると仮定して推定した。3D再構築のための作業時間は手法とは無関係に一定である。

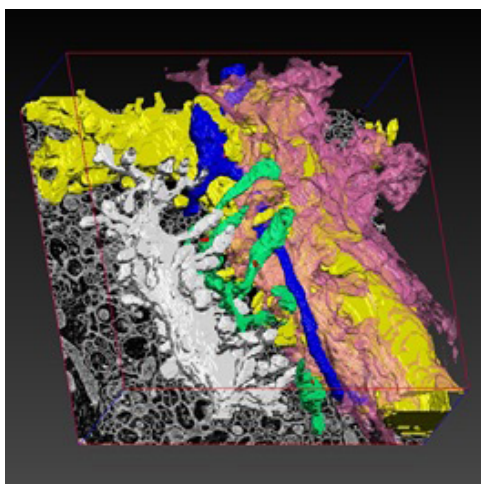


Fig. 6 プルキンエ細胞に隣接する複数細胞のセグメンテーション結果

樹状突起1 (黄色), 樹状突起2 (灰色), 軸索 (青色と緑色), シナプス結合部 (赤色), グリア細胞 (ピンク色).

切片の連続SEM像であり, 学習データセットが公開されている. このデータセットを用いて我々が提案する手法で学習し, 我々の画像に適用する転移学習を試みた. 結果はFig. 2に示した結果ほど良くなく, 画像中の約80%のミトコンドリアを細胞膜と誤認識してしまっていた. これは, 学習に用いた試料と, 本稿で用いた試料の組織と固定法・染色法などの違いによるものと考えられる. 異なる組織や固定法で作製した試料への適用は, 今後の課題である.

5 まとめ

生物組織などの連続電子顕微鏡画像の三次元再構築像から目的の構造物をセグメンテーションする作業は, 構造に対する専門の知識と時間のかかる作業であり, 深層学習を用いた取り組みはなされているものの, 大量の学習データセットと高性能のコンピューターが必要であることが大きなボトルネックである. そこで我々はWindows PCで動作し, 少ない学習データでセグメンテーション可能なツールを開発した. プルキンエ細胞の樹状突起の抽出に本ツールを適用し, 従来手法よりも作業時間を大幅に減少させることができた. 生物組織の構造を三次元的に把握することは生命現象の理解に大切であり, 本ツールを用いた三次元形態の理解促進の効率化が期待される.

参考文献

- 1) Fiala, J.: *Journal of Microscopy*, **218** (2005), 52-61.
- 2) Sommer, C., Straehle, C., Koethe, U. and Hamprecht, F.: *IEEE International Symposium on Biomedical Imaging*, 2011.
- 3) Cardona, A., Saalfeld, S., Schindelin, J., Arganda-Carreras, I., Preibisch, S., Longair, M., Tomancak, P., Hartenstein, V. and Douglas, R. J.: *PLoS ONE*, **7**, 6 (2012), 1-8.
- 4) Belevich, I., Joensuu, M., Kumar, D., Vihinen, H. and Jokitalo, E.: *PLoS Biology*, **14** (2016), 1-13.
- 5) Hubel, D. and Wiesel, T.: *Journal of Physiology*, **195** (1968), 215-243.
- 6) Arganda-Carreras, I., Turaga, S., Berger, D., Ciresan, D., Giusti, A., Gambardella, L., Schmidhuber, J., Laptev, D., Dwivedi, S., Buhmann, J., Liu, T., Seyedhosseini, M., Tasdizen, T., Kamensky, L., Burget, R., Uher, V., Tan, X., Sun, C., Pham, T., Bas, E., Uzunbas, M., Cardona, A., Schindelin, J. and Seung, H.: *Frontiers in Neuroanatomy*, **9** (2015), 1-13.
- 7) Januszewski, M., Kornfeld, J., Li, P., Pope, A., Blakely, T., Lindsey, L., Maitin-Shepard, J., Tyka, M., Denk, W. and Jain, V.: *Nature Methods*, **15** (2018), 605-610.
- 8) Konishi, K., Mimura, M., Nonaka, T., Sase, I., Nishioka, H. and Suga, M.: *Microscopy*, (2019), 338-341.
- 9) Micheva, K. and Smith, S.: *Neuron*, **55** (2017), 25-36.
- 10) Simard, P. Y., Steinkraus, D. and Platt, J. C.: *Seventh International Conference on Document Analysis and Recognition*, 2003.
- 11) Ronneberger, O., Fischer, P. and Brox, T.: *International Conference on Medical Image Computing and Computer Assisted Intervention*, 2015.
- 12) Jia, Y., Shelhamer, E., Donahue, J., Karayev, S., Long, J., Girshick, R. B., Guadarrama, S. and Darrell, T.: *ACM Multimedia*, 2014.
- 13) Kingma, D. and Ba, J.: *Proceedings of the 3rd International Conference on Learning Representations*, 2015.
- 14) Beier, T., Pape, C., Rahaman, N., Prange, T., Berg, S., Bock, D. D., Cardona, A., Knott, G. W., Plaza, S. M., Scheffer, L. K., Koethe, U., Kreshuk, A. and Hamprecht, F.: *Nature Methods*, **14** (2017), 101-102.
- 15) SNEMI3D, "http://brainiac2.mit.edu/SNEMI3D/".

燃焼反応の機能性評価によるプロセス全体最適志向の新製品開発

小西洋平*, 野崎 潔**, 齊藤卓一*

New product development through process optimization based on functionality evaluation of combustion reaction

Yohei KONISHI*, Kiyoshi NOZAKI** and Takuichi SAITO*

シリカナノ粒子の新規開発にあたり、汎用性のある粒子径制御手法開発を目指し、熱流体シミュレーション（CAE）を適用した機能性評価を行った。目的であるシリカナノ粒子の粒子径分布を制御するためには、火炎中の熱及び化学反応の制御が必要だが、火炎の定量的な温度・化学種濃度の測定は困難である。そこで、シリカナノ粒子生成を二つの機能に分解し、それぞれ CAE 解析により評価することでシステム設計を行った。シリカナノ粒子の粒子径分布制御検討のため、まず 1 段階目として、二つの機能に分けた評価及び火炎燃焼プロセスのばらつき研究を行った。2 段階目で CAE を用いて評価する範囲をシステム全体に拡大し、再現性の高い評価結果が得られるようになった。さらに、得られたロバストエンジニアリング情報を用いてシステムの変更・改造を行い、品質向上を達成することができた。これらの検討活動を通じて、シミュレーションと品質工学を組み合わせた手法による燃焼プロセス評価技術を確立し、シリカナノ粒子の粒子径分布制御技術を獲得した。

The thermal fluid simulation based functional evaluation of furnace system was carried out. Upon investigation of silica nano particle as a new commercial material, this work aimed to establish a versatile method for controlling the particle size distribution. To achieve the technical targets, controlling the chemical reaction and thermal heat in the flame was required. However, quantitative measurement of the flame temperature or the chemical population in the flame was quite difficult. Therefore, we tried to apply numerical analysis by decomposing the system function based on the idea of quality engineering method. At the 1st step, a partial evaluation of the separated function was validated. Next step was expanding this validated method to the whole furnace system. Then we achieved high reproducibility of the functional evaluations and acquired a robust engineering information (RE information) for the whole system.

By using the RE information, optimization and modification of the system was carried out and silica nano particle quality improvement was achieved. Through this work, we established an evaluation method such as a numerical simulation combined with quality engineering. And the technic for controlling size distribution of silica nanoparticle was obtained.

Key words シリカナノ粒子, 粒子径分布制御, 熱流体解析, 品質工学, 機能性評価
silica nano particle, particle size distribution control, thermal fluid analysis, quality engineering, functional evaluation

1 はじめに

本報告では、新規材料として開発を行ったシリカナノ粒子の粒子径分布制御を目的とし、品質工学的手法により、製造条件が与える品質ばらつきへの影響の評価（以下、機能性評価とする）を行った。シミュレーションによる機能性評価に基づき製造条件、製造装置の改良を行い、新規製品開発に役立てることができたので、評価手法及びその適用結果について報告する。

我々は外販用新規材料として、研磨剤用途シリカナノ粒子開発を行った。研磨剤用途シリカナノ粒子の製品化に向けた検討の中で、研磨時の欠陥低減を目的とし、火炎気相合成によって合成されるシリカナノ粒子の粒子径分布のばらつきを制御する必要があった。火炎気相合成法では火炎流れの乱れによって粒子径のばらつきが生じるが、この流れのばらつきを精密に制御することは容易ではない。この理由として、高温のガス中の温度及び火炎組成の計測が困難であること、および火炎流れの変動に影響するパラメー

* 生産本部 製造部
** 研究開発本部 材料・要素技術研究所

タが多数組み合わせされており、把握が難しい点が挙げられる。このため、粒子径分布が変化した、または製造ロット間ばらつきの程度が変化した際に、どのようなパラメータを変更するべきか？の指針がない状態であった。そこで我々は粒子合成システム全体を網羅的に評価するため、熱流体解析シミュレーション（以下、CAE とする）を用いた合成システム全体のパラメータ調査を試みた。

2 機能性評価手法

(1) 燃焼火炎による粒子成長のモデル化

Fig. 1 に目的機能と粒子成長過程の模式図を示す¹⁾。シリカナノ粒子は、火炎中での化学反応により生成され、火炎中を通過する間に粒子同士の衝突を繰り返しながら焼結して、やがて粒子直径が大きくなる。このため、粒子直径を制御するためには、A：粒子が通過する火炎の温度分布を制御すること、B：粒子同士の衝突頻度を制御することの二つの機能が必要であると考えた。Fig. 1 に示すように、火炎中を移動する粒子が受ける温度は形成された火炎温度分布を反映し、時間によって変化する。粒子が高温場に滞在する時間が長く、ゆっくりと冷やされる場合には粒子の成長が進み、大きな粒子となる。逆に高温場の滞在時間が短く、早く冷やされる場合には、小さな粒子となる。粒子の衝突頻度についても、火炎中のシリカ濃度が大きく、粒子同士の衝突頻度が大きい場合に粒子は大きくなり、火炎中にシリカが希薄な場合には粒子が小さくなる。ここで、粒子が通過する火炎中の軌跡が火炎の乱れによって複数存在する場合、それぞれの軌跡ごとに粒子の温度履歴、濃度履歴が異なることになり、得られる粒子はそれぞれの温度履歴、濃度履歴に応じた大きさの分布を持つことになる。本検討ではこの粒子径分布を安定させるため、設計条件に

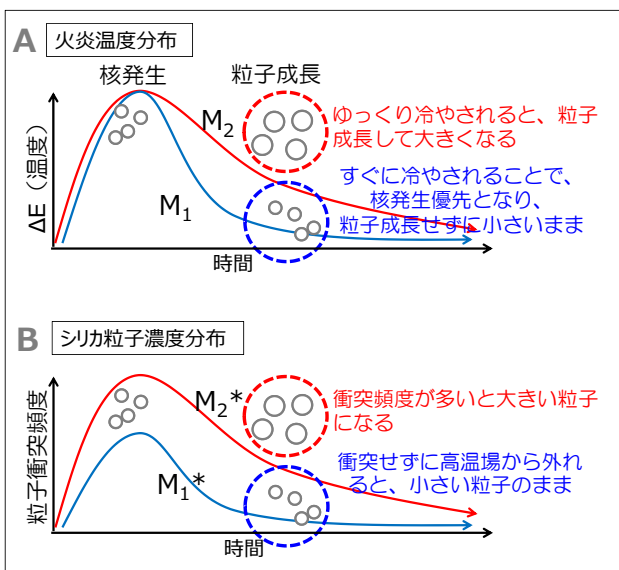


Fig. 1 火炎中での粒子成長モデル図

よる火炎中の温度分布、濃度分布のばらつきへの影響を評価し、安定したばらつきの少ない反応場のシステム設計を目指した。火炎中の分布の機能性評価を行うため、火炎中の各位置における標準条件の温度・濃度を出力することとし、誤差による各位置での温度、濃度のばらつきを標準SN比²⁾によって評価した。またCAEによる解析では、火炎中で固体のシリカナノ粒子が生成し、その粒子が成長する過程を数値計算することが困難であるため、粒子の衝突頻度については、火炎中のSiO₂ガス濃度分布を把握することで推測することとした。

(2) CAEによる燃焼プロセス全体の評価

Fig. 2 にシリカナノ粒子合成炉の模式図を示す。シリカナノ粒子合成炉の全体の構造や材質などの周辺環境も気体・熱の移動により火炎に影響しているため、システムの各部は火炎の安定性に対して相互に影響しあっているといえる。これらの要因の相互作用の結果として、火炎流れの乱れが決定される。また火炎流れの変化によって、Fig. 2中に示すようにそれぞれの粒子の通過経路が変化し、Fig. 1に示す粒子ごとに与えられる温度履歴、濃度履歴が変化すると考えた。そこで、評価するプロセス範囲はまずバーナーを中心に火炎形成に関わる因子（1）、次に炉構造全体を含む炉内温度、濃度に関わる因子（2）の二つに分けて機能性評価を行い、段階的に評価範囲をシステム全体に広げること、粒子径分布制御の全体最適化を行うこととした。システム範囲は、Fig. 3に示すプロセス機能展開表³⁾を作成することにより、システムの各部機能とそれに付随する制御因子、誤差因子を網羅的に取り上げることとした。直積実験はCAE解析ソフトに作製したシミュレーションモデルにより行った。シミュレーションモデルは、実物の設置寸法、壁面及び各ガス種の物性値を境界条件として、有限要素法による離散計算を行うための数値データである。このモデル上で直交表に対応してCAEの境界条件を変更させるために、解析ソフトと自動最適化用ソフトを連動させるシステムのセットアップを行った。これによりCAEによ

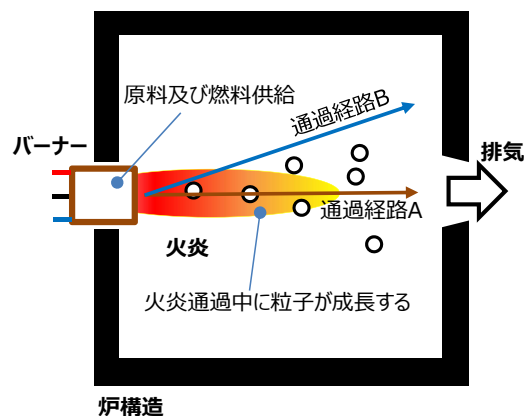


Fig. 2 シリカナノ粒子合成炉模式図

プロセス	制御因子	誤差因子	システム分割
原料、燃料ガス供給条件設定	A	a'	(1) 火炎形成に関わる因子
	B	b'	
	C	c'	
	D	d'	
	E	e'	
バーナー構造	F	f'	(2) システム全体の因子
	G	g'	
	H	h'	
	I	i'	
	J	j'	
	K	k'	
	L	l'	
合成炉構造	M	m'	
	N	n'	
合成中制御条件	O	o'	
	P	p'	

Fig. 3 システムのプロセス機能展開表

て自動で直積実験を実行することができ、大幅な開発コスト短縮が期待できる。また品質工学的手法における誤差の取り扱いとして、CAEでは設定した境界条件で計算するだけでは結果のばらつきを発生しないため、誤差として実際に起こりうる製造条件の変動幅を予めL12外側の直交表に割り付け、条件として設定することにより、実際の外乱によるプロセス変動を再現することにした。

(3) 機能性評価実験手法

CAEを用いた直積実験及び、設定した評価方法の検証を行うため、システム範囲の中のバーナーに関連する部分について、L18×L12のシミュレーションによる直積実験を行った。バーナーに関しての実験では、実際の火炎及び得られた粒子の評価を行い、実際のシステムとの整合性の確認も行った。次に、同様の手法での評価範囲を拡大し、システム全体についてのL36×L12実験を行った。シミュレーションで得られる温度・濃度の分布図について、各位置に格子状の出力点を設定し、位置ごとの数値データを出力した。格子を設定する範囲は、シリカナノ粒子成長が起こりうる温度範囲をあらかじめ実験から調査し、粒子成長を評価するのに適切な温度範囲のみのデータを取得できるように設定した。出力データはFig. 4に例として示すように、場所ごとの温度とSiO₂濃度とした。Fig. 4で示す温度分布の比較は、Fig. 1-Bで模式的に示した粒子の通過軌跡ごとの温度履歴のばらつきに相当する。得られた温度分布、濃度分布は、同じ設定条件内で誤差によって生じさせた分布を出力し、各値の平均値からのずれの大きさを標準SN比として評価した。

(4) 計測手法

各項にて実際に合成されたシリカ粒子の物性は下記手法

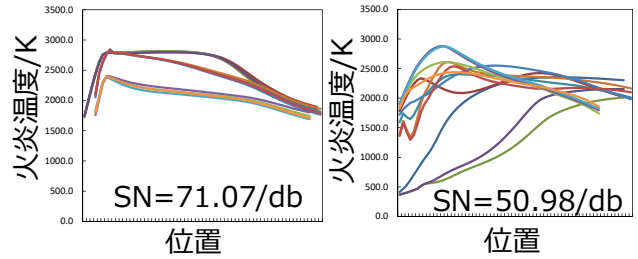


Fig. 4 シミュレーションによる火炎中の温度分布出力の例*図中のプロットは誤差条件による出力結果の違いを示す
(左) SN比が高い条件での誤差条件ごとのプロット
(右) SN比が低い条件での誤差条件ごとのプロット

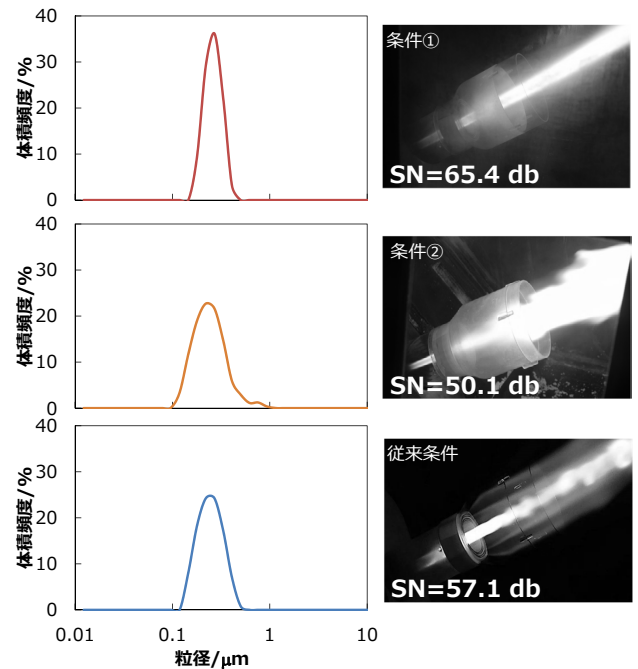


Fig. 5 各条件で合成されたシリカナノ粒子の粒子径分布 (左)、合成時の火炎 (右)*図中のSN比は同条件のシミュレーション結果から算出した数値

または装置により計測を行った。

- ・粒子径分布：レーザー回折法粒子径計測
- ・粒子比表面積：BET法比表面積測定（窒素吸着）

3 機能性評価実験の結果と考察

(1) CAEによるバーナーに関する直積実験

Fig. 5に合成された粒子の粒子径分布、火炎の写真を示す。シミュレーション結果からSN比が大きいと予想される条件①、SN比が小さいと予想される条件②を設定し、実炉での合成実験を行った。いずれの実験でも、火炎形成のために供給している原料ガス流量は同じとした。条件①では火炎の外観上の収束性が高く、安定な火炎が得られた。一方で、条件②では収束性が悪化し、不安定な火炎となった。さらに、それぞれの条件で合成されたシリカナノ粒子の粒子径分布を測定すると、条件①では粒子径分布の幅が狭くなっており、条件②では分布の裾が広がっていること

Table 1 確認実験結果

/db	火炎温度		SiO ₂ 濃度	
	推定	確認	推定	確認
最適	70.5	75.7	58.1	62.4
中間	55.6	55.3	35.9	36.6
利得	14.9	20.4	22.3	25.9

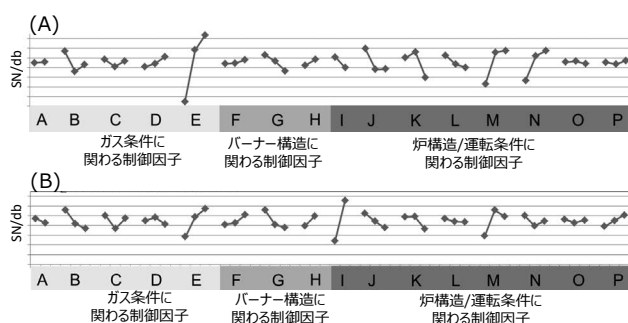


Fig. 6 火炎温度, SiO₂のSN比要因効果図
(A) 火炎温度, (B) SiO₂濃度

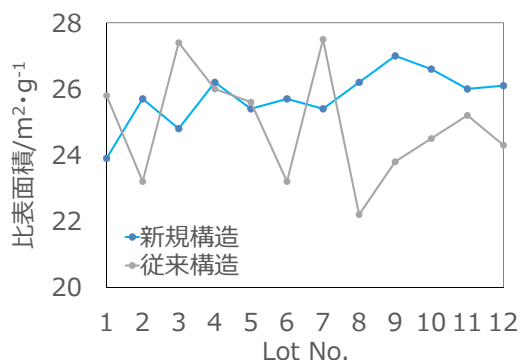


Fig. 7 パイロットラインで合成したシリカナノ粒子の比表面積の比較

が確認された。以上の結果から、各制御因子によって時間ごとの温度分布及び濃度分布を変化させ、目的機能である粒子径分布を制御できることが示された。火炎の場の安定性及び合成されるシリカナノ粒子に対して、今回のCAEを用いた機能性評価系は定性的に整合していると判断した。

(2) システム全体についての直積実験

次に、システム全体についてのL36×L12実験の確認実験結果をTable 1に示す。Table 1に示した確認実験結果より、L36×L12実験についての再現性を得られていると判断した。今回の実験で得られたSN比の要因効果図をFig. 6に示す。要因効果図から、火炎の安定性について多くの因子が関与していることが示唆された。得られた要因効果図中の制御因子の製造条件としての解釈として、SN比の寄与が大きい因子＝「SN比が大きくなる水準に設定し、製造工程上管理すべき因子」、及びSN比の寄与が小さい因

子＝「チューニングパラメータとして使用する因子」と考えることができる。取得した要因効果図をばらつきに着目したロバストエンジニアリング情報 (RE 情報) として用いることにより、シリカナノ粒子合成の生産性向上のための検討を試みた。

4 RE情報の活用：ロバストな新規合成炉の設計

シリカナノ粒子の量産に向けた検討を継続する中で、量産時の粒子径分布のロット間ばらつき低減施策として、合成システムの主要なキープーツである合成炉構造の変更を行った。すでに得られた要因効果図から、SN比の変化が大きい因子についてシミュレーション上でパラメータを変化させ、それぞれの条件での火炎流れを確認したところ、影響の大きい因子を変化させることで、火炎流れの逆流及び循環⁴⁾が生じることが確認された。このことから、現行の炉構造は製造条件の変化および外乱による火炎の不安定化が生じやすいと判断し、様々な条件下においてより火炎を安定化できる新規炉構造を設計した。新規炉でのCAE解析上では流れの逆流・循環流が生じず、現行装置よりも安定した火炎を形成できる構造となっていることが示唆された。そこで、この新規合成炉を用いたパイロットプラントでのテスト運転を行い、ロット間の粒子径分布ばらつきを調査した。ここで、合成ロットは合成炉点火～消火までの間に合成された粒子を1ロットとし、粒子径分布評価の指標を粒子比表面積として比較した。新規構造のパイロットプラントでの粒子比表面積のロット間ばらつきは25.8±0.7 m²/g (2σ)であり、従来構造での以前のテストラン結果 (比表面積：24.9±1.7 m²/g (2σ)) よりもロット間の変動が低減していることが確認され、RE情報を活用することによるばらつき低減効果を実証することができた。

5 まとめ

シリカナノ粒子合成における粒子径分布制御において、基本機能を二つに分けてCAEによる燃焼解析を行った。システム範囲を段階的に広くとり、誤差因子も直交表として割り付けることにより、高い再現性のある結果を得ることができた。また、製造システム中の火炎の流れについて、得られた要因効果図から実際の現象について考察することができ、これまで実験・計測が困難だった火炎燃焼プロセスを制御する指針を得た。この結果を用いて、粒子径分布が安定した新規装置の設計までを短期間で実施することができた。

今回開発した手法はCAEでの解析に対して汎用的に適用できるものであり、他の燃焼を伴う製造システムについて、今回の知見を展開し、更なる品質及び生産性の向上に取り組んでいけると考える。また、燃焼プロセスの新規開発の

ための手法として、CAEを用いた汎用的な評価手法を確立したことで、新製品開発期間を短縮、開発コストを大幅に低減することができた。

参 考 文 献

- 1) V. K. La Mer and R. Dinegar: *J. Am. Chem. Soc.*, **72** (1950), 4847.
- 2) 田口玄一，横山巽子：ベーシックオフライン品質工学，日本規格協会（2008）。
- 3) 嘉指伸一：プロセス機能展開表の活用とロバストエンジニアリング情報の活用による初期型不良の撲滅と立上げリードタイムの短縮，全国能率大会，全日本能率連盟，**63**, pp. B73-76（2012）。
- 4) 水谷幸夫：燃焼工学（第3版），森北出版株式会社（2013）。

RtoR 直描露光装置を活用可能な有機薄膜トランジスタ湿式作製プロセスの開発

小泉翔平*, 堀 正和*, 林田洋祐*, 内藤一夫*, 川端誠司*, 鬼頭義昭*

Development of an organic thin-film transistor by a wet fabrication process utilizing roll-to-roll direct imaging exposure system

Shohei KOIZUMI*, Masakazu HORI*, Yosuke HAYASHIDA*, Kazuo NAITO*, Seiji KAWABATA* and Yoshiaki KITO*

フレキシブル基板上に有機薄膜トランジスタ (OTFT) を作製可能なプロセスを開発した。配線形成に無電解めっき法を用いるなど、開発したプロセスは全て湿式かつ低温工程である。そのためロール・トゥ・ロール (RtoR) 方式への適応性は高く、OTFT 回路を大面積基板上に低コストで作製できることが期待できる。今回、RtoR 方式への前段階として、開発した RtoR 直接描露光装置を用い、A4 型大面積フレキシブル基板上に OTFT を作製することに成功した。加えて、OTFT アプリケーション探索の 1 つとして、OTFT アクティブマトリクス回路を用いた圧力センサーデバイスの試作にも成功した。

We developed a method for fabricating an organic thin-film transistor (OTFT) on a flexible substrate by a wet fabrication process utilizing electroless plating. In addition, the OTFT was manufactured on a large-area substrate using a roll-to-roll direct imaging exposure system.

Key words 有機トランジスタ, 湿式工程, 無電解めっき, ロール・トゥー・ロール, フレキシブル基板
organic transistor, wet process, electroless plating, roll-to-roll, flexible substrate

1 はじめに

近年、有機薄膜トランジスタ (Organic Thin Film Transistor; OTFT) に関する研究が盛んに行われている^{1)~7)}。OTFT は、湿式工程で作製可能である点や、非常に高い柔軟性を有する点などの利点を有する^{8)~10)}。よって、低コスト・高生産性が実現可能なロール・トゥー・ロール方式 (RtoR) での量産が期待されている。RtoR に展開するためには、基板にはポリエチレンテレフタレート (PET) やポリエチレンナフタレート (PEN) などのフレキシブル基板材料を用いることが必要不可欠である。しかしながら、上記基板材料は熱可塑性を有しており、熱処理プロセスなどにより形状変化が生じるため、積層構造を作製する際にアライメントが困難となる問題を内在している。この問題を鑑みて、我々は RtoR 直描露光装置 (Fig. 1) を開発した。上記装置は、RtoR 基板搬送システムと直描露光システムより構築された装置であり、アライメントマークを認識して基板変形に追従することが可能である。2017年時点での装置能力としては、解像度 $6\ \mu\text{m}$ 、アライメント精度 $\pm 3\ \mu\text{m}$



Fig. 1 RtoR 直描露光装置

の性能を有している¹¹⁾。今回、我々は上記 RtoR 直描露光装置を活用可能な新規 OTFT 湿式作製プロセスを開発することに成功した。湿式プロセスにより素子を作製する場合、どのようなプロセスで配線形成をするかが大きなポイントとなる。我々は湿式配線形成手法として、無電解めっき法に着目した。無電解めっき法とは化学的に金属薄膜を形成させる手法であり、湿式かつ低温工程で均一性の高い金属膜を得ることが可能である。OTFT 用配線として無電解めっきを用いる場合、如何にめっき膜の平坦性を向上する

* 研究開発本部 材料・要素技術研究所

かがポイントとなる。我々は、めっき下地膜としてアミン系のシランカップリング剤を用いることにより、触媒であるPdまたはPdイオンを化学的に捉えることができ、条件によってはRa 1 nm程度の非常に平坦なめっき膜を得ることに成功した。加えて、我々は新規な半導体膜のパターニング方法を開発した。TIPS-pentaceneなどの可溶性有機半導体材料は、湿式成膜できる利点を有するが、汎用的な有機溶剤に溶けてしまうため、半導体膜上にレジストを成膜することは困難である。そこで、我々は、水溶性レジストを用いることにより、パターニングの問題を解決した。水溶性レジストを活用することで100 μm程度の半導体膜のパターニングが可能となる。以下にOTFTの作製プロセスの詳細と特性評価結果を記す。加えて、RtoR直描露光装置を用いて作製したA4型大型基板OTFT回路試作に関しても合わせて記載する。

2 OTFT 湿式作製プロセス

以下にOTFT作製プロセスの詳細を記す。

基板にはCu膜(150 nm)付きPEN基板($t=100 \mu\text{m}$)を用い、基板サイズは5 cm×6 cmとした。まず、基板にポジ型レジスト溶液(PFI-34A6, 住友化学社製)をディップ成膜し、その後プリバーク(PB)を行った。フォトマスクを介してUVを照射し、その後ポストエクスポージャーバイク(PEB)を行った。次に2.38% TMAH水溶液(NMD-3, 東京応化工業)に基板を浸漬してレジストを現像した後、塩化第二鉄水溶液に基板を浸漬させ、Cu膜のエッチングを行った。その後、基板をアセトンに浸漬してレジストを除去することにより、PEN基板上にゲート(G)電極を作製した。

次にゲート絶縁膜の形成を行った。ゲート絶縁膜材料には感光性エポキシ樹脂を用いた。G電極を作製した基板をUV洗浄した後、感光性エポキシ樹脂溶液をディップ成膜した。感光性エポキシ樹脂溶液には、SU-8 3005(日本化薬社製)をシクロヘキサノンで3.3倍希釈(重量比)して調整したものを用いた。成膜後にPBを行い、その後、フォトマスクを介してUVを照射した。次いで、PEBを行った後、基板をプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート(PGMEA)に浸漬させエポキシ膜の現像を行った。現像後に、ポストバークを行うことにより、ゲート絶縁膜を形成した。

次にソース・ドレイン(SD)電極の作製を行った。基板表面をUV洗浄により表面改質した後、基板全面にアミン溶液をディップ成膜した。アミン溶液には、N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyltrimethoxysilaneをメチルイソブチルケトンで0.2 wt%となるよう希釈した溶液を用いた。アミン層を形成した後、無電解めっき用触媒溶液であるPd溶液(アクチベーター7331, メルテックス社製)に基板を浸漬

し、基板に触媒を付与した。水洗した後、無電解Niめっき浴(メルプレートNi-6575, メルテックス社製)に基板を浸漬させ、基板全面に無電解Niめっき膜を形成した。基板を水洗・乾燥させた後、ポジ型レジストをディップ成膜し、PBを行った。次いで、フォトマスクを介してUVを照射した後、120℃で5分間PEBを行い、2.38% TMAH水溶液に基板を浸漬してレジストを現像した。基板を水洗した後、加温した混酸水溶液($\text{H}_3\text{PO}_4 : \text{CH}_3\text{COOH} : \text{HNO}_3 : \text{H}_2\text{O} = 10 : 1 : 1 : 2$ 重量比)に基板を浸漬し、無電解Niめっき膜のエッチングを行った。水洗後、基板をアセトンに浸漬してレジストを除去した後、無電解置換Auめっき浴(スーパーメックス#255, メタロー社製)に基板を浸漬し、Ni配線表面をAuで置換した。続いて、無電解還元Auめっき浴(スーパーメックス#880, メタロー社製)に基板を浸漬することにより、Auの厚付けを行った。水洗した後、乾燥のため基板を熱処理することにより、SD電極を作製した。無電解Auめっき処理することにより、Niめっき配線端部までAuで被覆することが可能となる。Fig. 2に無電解めっきにより作製した配線の断面SEM像を示す。ボトムゲート・ボトムコンタクト型のトランジスタを作製する場合、キャリアは主に電極端部よりチャネルに注入される。そのため、電極端部は半導体材料とエネルギー的に整合のとれた金属材料であることが望まれる。p型の有機半導体材料と相性のよい金属材料としてはAuが一般的であるが、真空成膜の場合はTiやCrなどの密着層が必要である。しかし、これらは有機半導体材料とのエネルギー的な相性が悪いため、大きなコンタクト抵抗を生じることになる。我々の手法であれば端部一面をAuで被覆することができ、加えて高価なAuを最表面のみ薄く形成できるため、コスト面においても利点があると考えている。

次に半導体層の形成を行った。SD電極を作製した基板をUV処理した後、絶縁膜表面修飾のため、0.5 wt%トリメトキシフェニルシラン(東京化成工業社製)トルエン溶

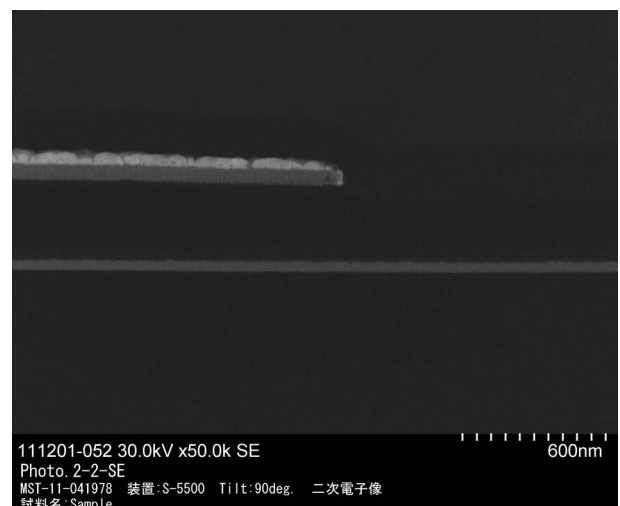


Fig. 2 無電解めっきで作製した配線の断面SEM像

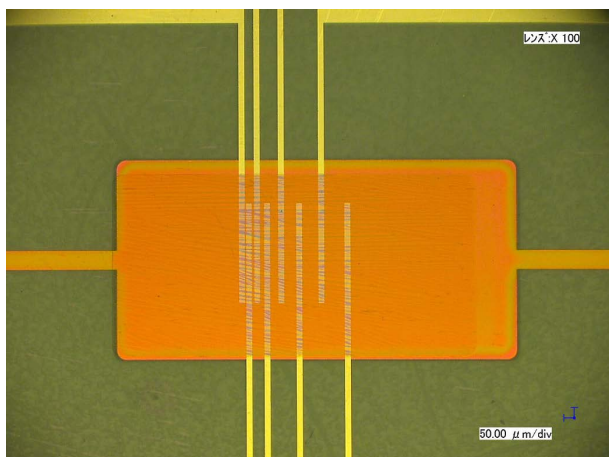


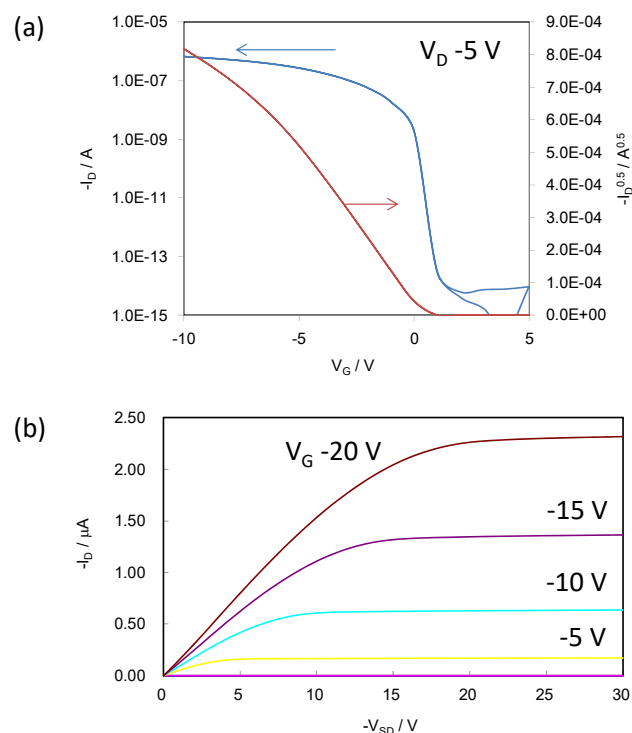
Fig. 3 フレキシブル基板上に作製した OTFT の光学顕微鏡像

液をディップ成膜した。次いで、熱処理を行った後、基板をペンタフルオロベンゼンチオール (PFBT) トルエン溶液に浸漬し、SD 電極の表面修飾を行った。PFBT を電極表面に修飾することにより、PFBT 分子のダイポールの効果により電極表面の仕事関数が深くなるため、有機半導体層へのホールキャリアの注入が容易となる。そのためコンタクト抵抗の小さい OTFT を作製できるようになる。基板をエタノールに浸漬してリンスした後、半導体溶液をディップ成膜した。半導体溶液には、TIPS-pentacene (シグマアルドリッチ社製) とポリスチレン (PS) (Mw ~280000, シグマアルドリッチ社製) がそれぞれ 1 wt% と 0.4 wt% となるようにトルエンで希釈した溶液を用いた。半導体溶液成膜のディップ成膜に関しては、引き上げと保持を繰り返すことによりある程度結晶粒のそろった薄膜が成膜可能となる。半導体層を形成した後、基板全面に水溶性のネガ型レジストである BIOSURFINE-AWP 水溶液 (東洋合成工業社製) をスピン成膜した。BIOSURFINE-AWP 膜を自然乾燥させた後、フォトマスクを介して UV を照射した。露光後、基板を水に浸漬することにより、BIOSURFINE-AWP 膜の現像を行った。基板を乾燥した後、基板をトルエンに浸漬して半導体膜のパターニングを行った。最後に熱処理を行うことにより、フレキシブル基板上に OTFT を作製した。

以上が OTFT 作製プロセスの詳細であるが、工程は全て湿式であり、各工程における熱処理温度は 120°C 以下の低温である。フレキシブル基板上に作製した OTFT の光学顕微鏡像を Fig. 3 に示す。チャンネル方向に平行な方向に伸びるようにして TIPS-pentacene 結晶が成膜できていることを確認した。

3 OTFT 評価結果

Fig. 4 にフレキシブル基板上に作製した OTFT (チャンネル長 $L=40 \mu\text{m}$, チャンネル幅 $W=500 \mu\text{m}$) の伝達特性 (a) および出力特性 (b) を示す。作製した OTFT の閾値電圧

Fig. 4 フレキシブル基板上に作製した OTFT (チャンネル長 $L=40 \mu\text{m}$, チャンネル幅 $W=500 \mu\text{m}$) の伝達特性 (a) および出力特性 (b)

V_T は 0.4 V, Subthreshold swing (SS) は 0.21 V/dec, 移動度は $0.41 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であった。作製した OTFT はヒステリシスが十分小さく、また SS も良好であることより、良好な半導体界面が形成されていると思われる。これは、TIPS-pentacene と PS の層分離による効果であると考えている¹²⁾¹³⁾。

上記評価結果より、本プロセスで作製した OTFT は比較的良好な性能を有し、回路駆動用素子として活用できると期待される。小型基板での原理確認ができたため、次に大型基板上への作製を検討した。

4 大型基板上への OTFT 回路試作

RtoR 方式への展開の前段階として枚葉大型基板への作製を検討した。基板は $270 \text{ mm} \times 360 \text{ mm}$ サイズの Cu 膜付き PEN 基板を用い、 $210 \text{ mm} \times 300 \text{ mm}$ のエリアに OTFT アクティブマトリクス回路を作製した。A4型フレキシブル基板上に OTFT を作製するにあたり、全ての露光プロセスは開発した RtoR 直描露光装置を用いて行った。RtoR 直描露光装置内にあるメインロールに枚葉基板を貼り付けて露光を行った。2nd 露光以降は、装置内カメラでアライメントマークを認識することにより行った。また、大型基板では、材料成膜は全て RtoR ダイコート装置を用いて行った。ダイコートは RtoR 方式への適応性が高く、高い生産性が期待できる成膜手法である。ダイコート装置のメインロールに枚葉基板を直り付けて、材料成膜を行った。

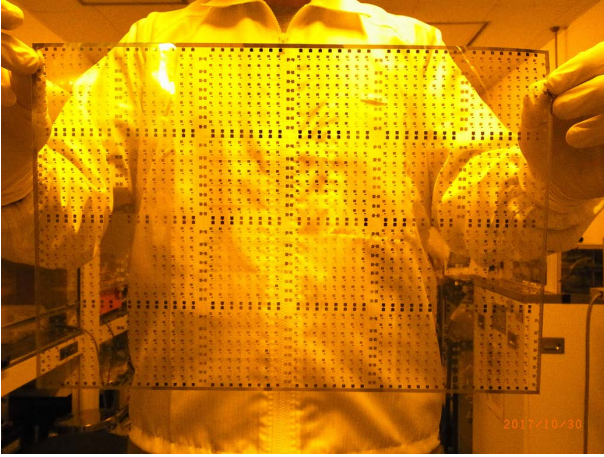


Fig. 5 OTFT アクティブマトリクス回路大型基板

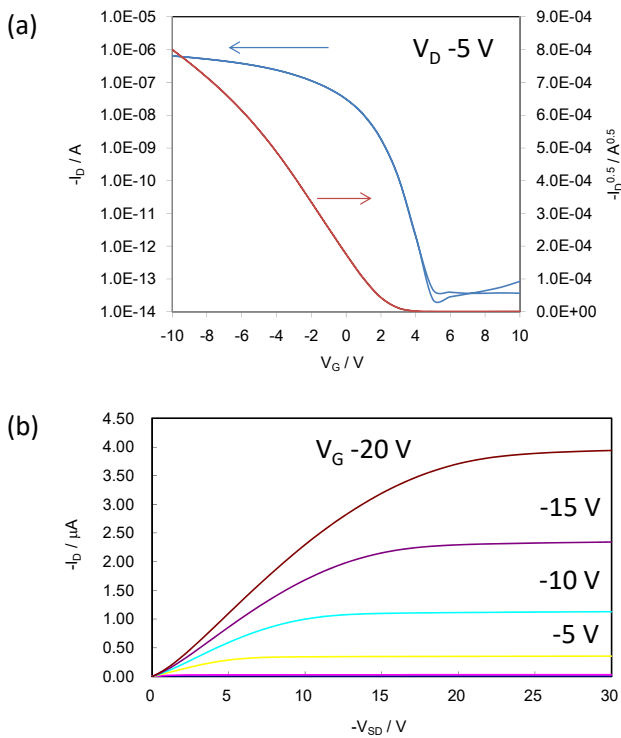


Fig. 6 大型フレキシブル基板に作製した OTFT (チャンネル長 $L=55 \mu\text{m}$, チャンネル幅 $W=500 \mu\text{m}$) の伝達特性 (a) および出力特性 (b)

作製した OTFT アクティブマトリクス回路大型基板写真を Fig. 5 に示す。また、大型基板上に作製した OTFT の伝達特性および出力特性を Fig. 6 に示す。作製した OTFT のチャンネル長は $55 \mu\text{m}$ 、チャンネル幅は $500 \mu\text{m}$ である。OTFT 特性評価結果より、大型基板上に作製した OTFT は、低電圧駆動可能であり、ヒステリシスの十分小さい良好な特性を示すことが分かった。76個の OTFT を評価した際の平均移動度は $0.18 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であり、最高値は $0.5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であった。移動度の不均一性が大きい理由としては、半導体膜の結晶性の不均一性が主の要因であると考えている。半導体成膜条件を最適化することにより、特性ばらつきの改善が見込める。以上の結果より、我々が開発した OTFT 作製プ

ロセスは、大型基板への応用も十分可能であることが分かった。今後は、RtoR 方式での素子作製検討と OTFT のアプリケーション探索を進めていく。

5 プロセスの開発とその応用

OTFT の研究は盛んに行われているものの、今だ IGZO に代表される酸化物半導体トランジスタに比べて移動度や安定性に乏しいのが実状である。近年の材料開発により、OTFT の性能は向上しているものの、実用化に向けて改善すべき課題は山積しており、OTFT の市場は現状ほとんどないと言って良い。酸化物半導体やシリコン半導体トランジスタと差別化したディスプレイ以外の新たなアプリケーションを見出すことが必要である。

今回、我々は OTFT の一つのアプリケーションとして、圧力センサーデバイスの試作を行った。OTFT の利点の大きな1つは、やはり柔軟性に富む点であり、無機半導体トランジスタと差別化できる特徴である。圧力センサーデバイスであれば、柔らかく割れにくい有機材料の特徴を最大限に活用できると期待される¹⁴⁾。

センサーデバイス用 OTFT アクティブマトリクス (8×8) 回路基板写真を Fig. 7 に示す。OTFT アクティブマトリクス上に感圧導電性ゴムおよび Common 電極を乗せることで圧力センサーデバイスとして機能する。感圧導電性ゴムは、圧力が印加されるとゴム中に分散した導電性粒子が接触し抵抗が小さくなる材料である。作製した圧力センサーデバイスの断面模式図を Fig. 8 に示す。作製した圧力セン

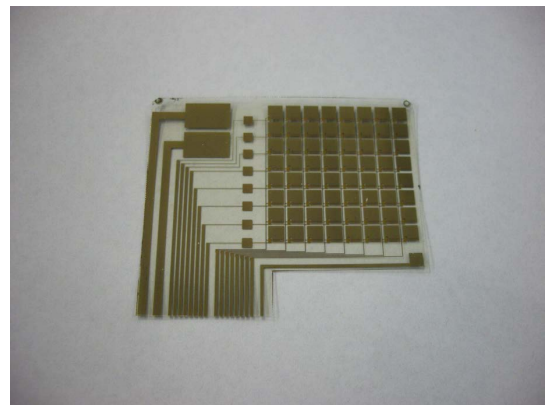


Fig. 7 圧力センサーデバイス用 OTFT アクティブマトリクス回路基板写真

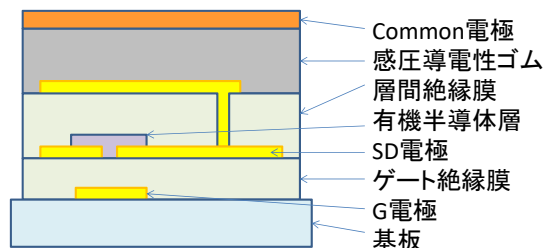


Fig. 8 作製した OTFT 圧力センサーデバイスの断面

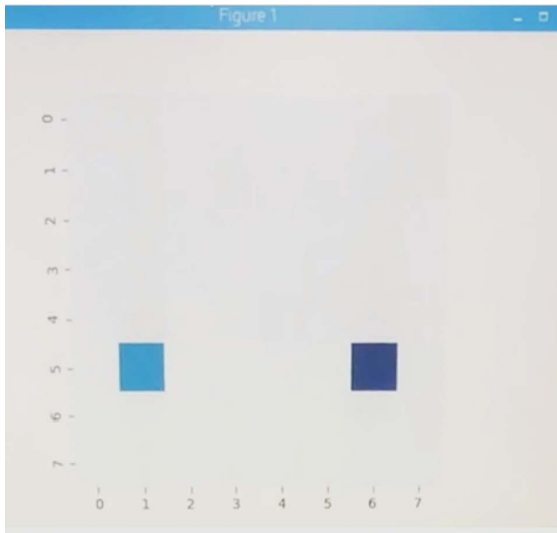


Fig. 9 OTFT 圧力センサーデバイス駆動実験結果

センサーデバイスを電気回路基板に接続し、マイクロコンピュータでデバイスの制御を行った。読みだされる電圧の変化を検出することにより、マトリクスのどの部分に圧力がかかったかを特定することができる。Fig. 9 は OTFT 圧力センサーデバイスの駆動実験結果である。マトリクス中の 2 点に圧力を印加した際のアウプットをディスプレイ上に表示することに成功した。原理確認のための実験であり、今回作製した 1 つのマトリクスは 3 mm □ 程度と大きい。今後は露光プロセスの特徴を出すためにも微細化検討を進めていきたい。加えて、OTFT の特徴を更に上手く活かせる様なアプリケーションを見出していきたいと考えている。

6 まとめ

本研究では、OTFT 作製プロセスを開発し、A4 型大型フレキシブル基板上に OTFT アクティブマトリクス回路を作製することに成功した。本 OTFT 製造プロセスは、湿式・低温工程であり、基本的にすべてのプロセスは RtoR 方式に適用することができる。また、直接描画露光装置を用いることで、基板が変形した場合でも、高精細な配線形成および位置合わせが可能となる。以上の結果は RtoR 方式に

よる OTFT 回路基板の量産が実現できることを期待させる結果であると言える。

参考文献

- 1) C. D. Dimitrakopoulos and P. R. L. Malenfant: *Adv. Mater.*, **14** (2002) 99-117.
- 2) C. R. Newman, C. D. Frisbie, D. A. Da Silva Filho, J.-L. Bredas, P. C. Ewbank and K. R. Mann: *Chem. Mater.*, **16** (2004) 4436-4451.
- 3) Y.-Y. Lin, D. J. Gundlach, S. F. Nelson and T. N. Jackson: *IEEE Electron Device Lett.*, **18** (1997) 606-608.
- 4) M.-H. Yoon, H. Yan, A. Facchetti and T. J. Marks: *J. Am. Chem. Soc.*, **127** (2005) 10388-10395.
- 5) R. Ruiz, A. Papadimitratos, A. C. Mayer and G. G. Malliaras: *Adv. Mater.*, **17** (2005) 1795-1798.
- 6) G. Gu, M. G. Kane, J. E. Doty and A. H. Firester: *Appl. Phys. Lett.*, **87** (2005) 243512.
- 7) H. A. Becerril, M. E. Roberts, Z. Liu, J. Locklin and Z. Bao: *Adv. Mater.*, **20** (2008) 2588-2594.
- 8) S. K. Park, T. N. Jackson, J. E. Anthony and D. A. Mourey: *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 063514.
- 9) S. Chung, S. O. Kim, S.-K. Kwon, C. Lee and Y. Hong: *IEEE Electron Device Lett.*, **32** (2011) 1134-1136.
- 10) K. Fukuda, Y. Takeda, Y. Yoshimura, R. Shiwaku, L. T. Tran, T. Sekine, M. Mizukami, D. Kumaki and S. Tokito: *Nat. Commun.*, **5** (2014) 4147.
- 11) Y. Kito, M. Hori, Y. Hayashida, T. Suzuki, H. Komiyama, T. Watanabe, T. Kurashige, M. Kato and K. Nara: *Proceeding of IDW16*, (2016) 515-518.
- 12) D. K. Hwang, C. Fuentes-Hernandez, J. D. Berrigan, Y. Fang, J. Kim, W. J. Potscavage, Jr., H. Cheun, K. H. Sandhage and B. Kippelen: *J. Mater. Chem.*, **22** (2012) 5531-5537.
- 13) A. F. Paterson, N. D. Treat, W. Zhang, Z. Fei, G. Wyatt-Moon, H. Faber, G. Vourlias, P. A. Patsalas, O. Solomeshch, N. Tessler, M. Heeney and T. D. Anthopoulos: *Adv. Mater.*, **28** (2016) 7791-7798.
- 14) D. Elkington, N. Cooling, W. Belcher, P. C. Dastoor and X. Zhou: *Electronics*, **3** (2014) 234-254.

リアルバーチャル・ブリッジ：現実空間のオブジェクトと仮想空間のオブジェクトの間を仲介するモジュール機構

高階知巳*, 国米祐司*

Real-Virtual Bridge: A Modular Mechanism to Mediate Between Real and Virtual Objects

Tomomi TAKASHINA* and Yuji KOKUMAI*

バーチャル・リアリティ (VR) は、エンターテインメント分野での普及が進み、今後はより広い分野のアプリケーションへ展開されることが期待されている。そのようなトレンドにおいて、VR のアプリケーションはリアルとバーチャルの境界をまたがるという見通しから、我々は現実のオブジェクトと仮想オブジェクトを仲介するリアルバーチャル・ブリッジという概念的モデルを提案する。本論文では、その概念とアーキテクチャを説明し、次に、2つの具体的な応用例を紹介する。スマートフォンへの応用ではVR のアプリケーションを使用している最中に現実のスマートフォンを操作できる。顕微鏡への応用では仮想空間の実験室から遠隔操作で顕微鏡を用いた作業を行うことができる。リアルバーチャル・ブリッジと同様の概念はSF 作品にも見られるが、我々はそのアーキテクチャを明示的に定義した。我々はリアルバーチャル・ブリッジが、現実と仮想的なオブジェクトの統合により、新しいアプリケーションの創出を促進すると期待する。

The practical use of virtual reality (VR) is expected to be extended to a wide range of applications after its successful deployment in the entertainment sector. Currently, the domain of VR applications crosses the boundary between the real world and the virtual world. Therefore, we propose a real-virtual bridge, a conceptual model that can be used to mediate between real and virtual objects. We introduce the concept and architecture of a real-virtual bridge and describe two applications of the bridge to smartphones and microscopes. As for the application to smartphones, users can operate real smartphones during VR experiences. As for the application to microscopes, users can do experimental work using real microscope from the virtual laboratory. Although concepts similar to a real-virtual bridge exist in science fiction works, we explicitly define its architecture in this paper. We believe that a real-virtual bridge promotes emerging applications by integrating real and virtual objects.

Key words バーチャル・リアリティ, リアルバーチャル・ブリッジ, タッチスクリーン, 顕微鏡, スマートフォン
virtual reality, real-virtual bridge, touchscreen, microscope, smartphone

1 はじめに

バーチャル・リアリティ (VR) は、エンターテインメント分野での普及が進み、今後はより広い分野のアプリケーションへ展開されることが期待されている。これまで VR 関連技術は、各種シミュレータ、デザインレビューシステムなど、仮想空間内に閉じたシステムに適用されてきたが、今後は VR のアプリケーションは現実世界と仮想世界の境界を越えていくのではないかと考えられる。

現実のオブジェクトと仮想的なオブジェクトの間のインタラクションについては、Harley 他が仮想世界のための入

力手段として物理的なオブジェクトとインタラクションすることを利用している²⁾。Ozaki 他は子どもが現実と仮想の両方の人形で遊ぶためのシームレスなインタラクション環境を提案している³⁾。我々は、現実のオブジェクトを単なる入力手段ではなく、仮想世界に統合するターゲットとして見ている。現実と仮想のオブジェクトを混合してシステム全体を構成するのは新しいシステム構成の方法論であると考えられる。

例えば、各種装置の遠隔操作を VR 環境の中から実行することは自然な流れだと考えられる。遠隔作業を PC やスマートフォンで GUI を操作しておこなうのではなく、操作

* 研究開発本部 技術戦略部

対象の環境を再現し知覚できるようにすることで、よりの確な遠隔制御を行うことができるようになる。また、近い未来、ユーザーがVRアプリケーションの中で長時間過ごすようになると、ヘッドマウントディスプレイ（HMD）やジェスチャー入力装置等のVR機器を外すことなく、現実世界に属するデバイスや、物体、他者へのアクセスが必要になるだろう。

これらの例のように現実と仮想のオブジェクトを混合してシステム全体を構成する方法論の1つとして、我々は、現実のオブジェクトと仮想的なオブジェクトを統合するリアルバーチャル・ブリッジを提案する。リアルバーチャル・ブリッジは現実のオブジェクトと仮想的なオブジェクトを仲介する概念的なモデルである。現実世界と繋がりのあるVRアプリケーションにリアルバーチャル・ブリッジを付加することで、現実のオブジェクトの状態を仮想空間から見るができたり、現実のオブジェクトを仮想空間から操作したりすることができる。

本論文では、リアルバーチャル・ブリッジのコンセプトとアーキテクチャを紹介する。そして、このモデルを仮想空間におけるスマートフォン及び顕微鏡とのインタラクションに応用する。最後に結論を述べる。

2 リアルバーチャル・ブリッジ

リアルバーチャル・ブリッジは現実のオブジェクトとそれに対応する仮想オブジェクトの間を仲介するモデルである。リアルバーチャル・ブリッジの機構は、仮想世界で作業をしながら現実のオブジェクトを容易に統合することを可能にする。そのために、我々は代理オブジェクトを用いる。これは、現実のオブジェクトの仮想世界における代替表現である。代理オブジェクトは仮想世界において、物理的な制約に苦しむことなく、便利で都合の良い場所に配置することができる。

例えば、ユーザーは仮想空間において、現実の実験室における機器に対応する代理オブジェクトを、都合の良い場所にレイアウトできる。また、この仕組みは、教育コンテンツを構成するときにも有用であろう。例えば、高校の生徒がプロフェッショナルクラスの顕微鏡を仮想実験室から使うこともできる。

(1) 要求

リアルバーチャル・ブリッジが満たすべき条件は、加法性 (additivity) と相互性 (mutuality) である。加法性は、リアルバーチャル・ブリッジがオブジェクトそのものに対して修正が不要なことを意味している。相互性は、状態の変化が現実世界と仮想世界両方で起こることを求めている。対称相互性は、変化の発生元は現実世界と仮想世界両方ありえる場合で、一方、非対称相互性は、変化の発

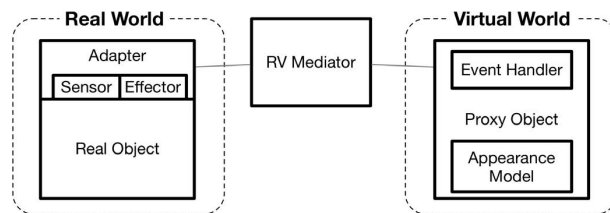


Fig. 1 リアルバーチャル・ブリッジの基本アーキテクチャ

生元は現実世界と仮想世界のどちらかで一方で良い場合を言う。

(2) アーキテクチャ

Fig. 1 はリアルバーチャル・ブリッジのアーキテクチャを示している。図中のリアルバーチャル・メディエーター (RV Mediator) は、状態とアクションを現実世界 (Real World) と仮想世界 (Virtual World) の間で同期させる。我々は、現実のオブジェクト (Real Object) に対応する仮想世界におけるオブジェクトを代理オブジェクト (Proxy Object) と呼ぶ。

現実のオブジェクト (Real Object) にはアダプター (Adapter) が付加される。このアダプターは現実世界の状態を取得するセンサー (Sensor) と現実世界に必要な変化を起こすエフェクター (Effector) から成る。

リアルバーチャル・メディエーターは、代理オブジェクトが理解できるように、センサーで取得された情報をイベントに翻訳したり、仮想空間におけるアクションを現実世界に反映させたりできる。アダプターはソフトウェア、ハードウェアどちらの形も取りうる。

代理オブジェクトは、リアルバーチャル・メディエーターからのメッセージを仮想空間内のイベントに変換するイベントハンドラー (Event Handler) や、仮想空間での視覚的な表現モデルであるアピランス・モデル (Appearance Model) を持っている。

3 実装例

(1) スマートフォンのためのリアルバーチャル・ブリッジ

ユーザーはVRを体験している最中に現実のスマートフォンを使いたくなるかもしれない。それゆえに、仮想世界から代理オブジェクトを通して現実のスマートフォンの操作が可能になれば有用であると言える。

我々は、仮想空間から現実のスマートフォンを操作するプロトタイプを、Unity を用いて構築した⁴⁾。そのプロトタイプでは、ユーザーはヘッドマウントディスプレイとしてOculus Riftを頭に装着し、手の操作を入力する装置として2つのOculus Touchをそれぞれ両手に持ち、仮想空間を体験できる。仮想空間においてユーザーに見えるのは、代理スマートフォン (Proxy Smartphone) とアバターの手である (Fig. 2右)。

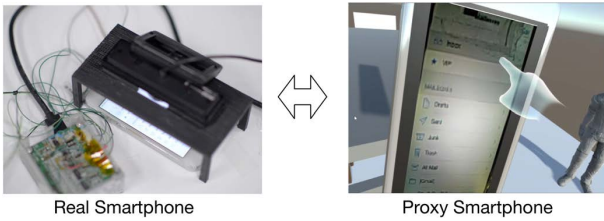


Fig. 2 スマートフォンのためのリアルバーチャル・ブリッジ

アバターの手はOculus Touchにより得られる現実のユーザーの手の位置と状態（握っている、特定の指を伸ばしているなど）を反映している。そして、仮想空間のスマートフォンのタッチパネルをアバターの指で操作すると、その操作が現実のスマートフォンに反映され、その反応もリアルタイムで仮想空間のスマートフォンに反映される。

簡易的なユーザー評価では、被験者に仮想空間からスマートフォンのメールのチェックや、モグラたたき風のゲームをプレイしてもらったところ、あたかも現実のスマートフォンのタッチパネルを操作しているようだという被験者のコメントが得られている。

このプロトタイプの実現にあたっては、Fig. 1の構成を展開し、Fig. 3の様になった。現実のスマートフォンにはFig. 2の左側のようにアダプターが付加されている。エフェクターに相当する部分には、指のタッチの代わりに騙し信号を出力することでタッチパネルを操作する手法⁶⁾を実現する信号発生器（Deception Signal Emitter）を用いている。また、センサーについては、スマートフォンの画面をキャプチャするためのWebカメラを使い、その画像はカメラサーバー（Web Camera Server）により仮想世界に送られる。タッチ変換コントローラー（Fake Touch Controller）がタッチイベントとタッチ位置を変換し、信号発生機に制御信号を送る。カメラサーバーとタッチ変換コントローラーが、リアルバーチャル・メディエーターに相当する。

この実装例では、スマートフォンのソフトウェアおよびハードウェアの改造が不要なので、リアルバーチャル・ブリッジの加法性の条件を満たしているし、変化が双方で起こるので相互性の条件も満たしている。

なお、代理スマートフォンはUnityにおけるオブジェクトとして記述されているので、ユーザーは代理スマートフォンをユーザー自身のVRアプリケーションに単純にUnityオブジェクトとして取り込むことで統合することができる。

(2) 顕微鏡のためのリアルバーチャル・ブリッジ

我々は現実の顕微鏡と接続するVRアプリケーションのプロトタイプをUnityを用いて構築した⁵⁾。3(1)と同様にユーザーはOculus RiftとOculus Touchにより、仮想空間を体験できる。そのモジュールアーキテクチャにより、仮

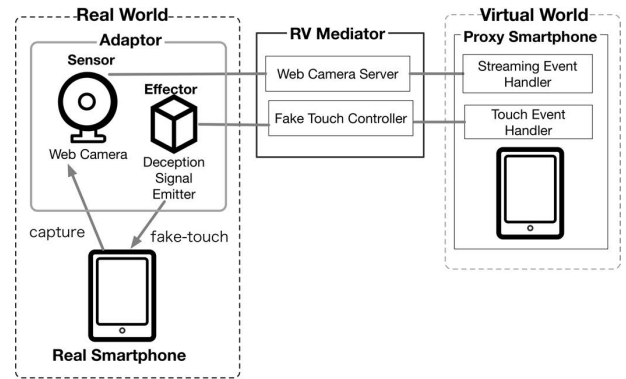


Fig. 3 スマートフォンのためのリアルバーチャル・ブリッジの構成

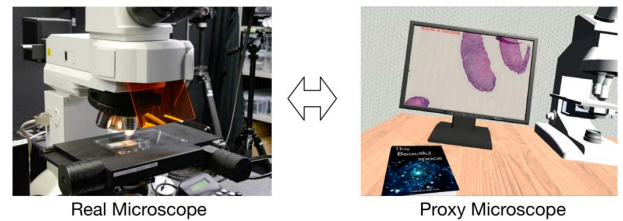


Fig. 4 顕微鏡のためのリアルバーチャル・ブリッジ

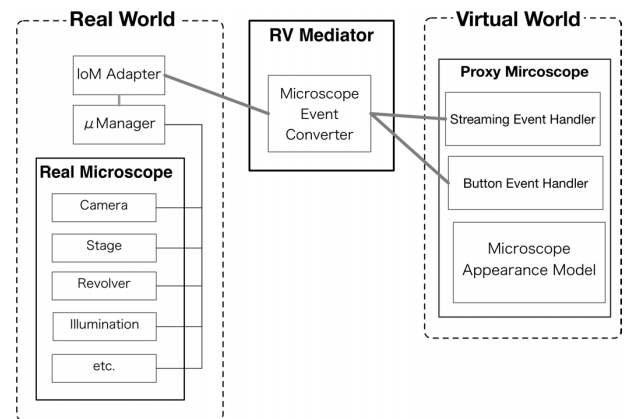


Fig. 5 顕微鏡のためのリアルバーチャル・ブリッジの構成

想空間において、現実のオブジェクトの機能を何の変更もなしに使うことができ、かつ、ユーザーは代理オブジェクトを任意の場所に配置すること可能である。

このプロトタイプでは、ユーザーは仮想空間において、顕微鏡のステージを動かしたり、対物レンズの切換えをしたりして、画像を観察することができる（Fig. 4）。仮想空間は、首を動かすことで360度の表示空間となるので、観察中の画像をすぐに視野いっぱいに拡大して仮想空間の中に表示するといった使い方ができる。さらに、仮想空間であるので、遠隔操作や物理的に離れた場所にいる他のユーザーとの共同作業も可能である。

この事例におけるリアルバーチャル・ブリッジの構成をFig. 5に示す。3(1)と同様にFig. 1の構成を展開したもので、センサーとエフェクターは、顕微鏡を制御するソフトウェアレイヤーが該当する。具体的には、顕微鏡の制

御そのものはオープンソースの μ Manager¹⁾ を用い、その上にソケット通信機能を実現する IoM Adapter を開発した。

また、顕微鏡そのもののソフトウェアおよびハードウェアの改造が不要なので、これはリアルバーチャル・ブリッジの加法的条件を満たしているし、変化が双方で起こるので相互性の条件も満たしている。

4 考察

リアルバーチャル・ブリッジは仮想化された現実のオブジェクトとの仮想的なインタラクションを通して現実のオブジェクトを仮想世界で利用できるメカニズムである。前節では、Fig. 1 の基本アーキテクチャを基に展開することにより、スマートフォンと顕微鏡に対して、リアルバーチャル・ブリッジを構成することができることを示した。

なお、その2つの実装例では、主たる情報が画像で表現されるために、あまり複雑ではなかった。つまり、代理オブジェクトのアピアランス・モデルとして複雑なアニメーションを実装する必要がないという点で実装しやすい対象であったが、アニメーションモデルも実装する必要がある対象も多いだろう。

現実のオブジェクトと仮想オブジェクトの関係に関しては、お互いの役割は交換可能である。上の例では、現実のオブジェクトが主体であって、仮想世界からどうやって現実のオブジェクトにアクセスするかに関心があった。しかしながら、仮想世界のオブジェクトが主体で、ユーザーは現実世界における代理オブジェクトを通して、仮想世界のオブジェクトにアクセスしたいという場合もあるだろう。

また、現実と仮想を混合させてシステムを構成するというアプローチとしては、オーグメンテッド・リアリティ (AR) もあるが、AR ではあくまでも現実世界をベースにしているために、現実世界の制約にどうしても縛られてしまう。本研究のように仮想世界をベースにすることにより現実の制約にとらわれないダイナミックなシステム構成が可能になる。

5 まとめ

本論文では、リアルバーチャル・ブリッジの研究課題について述べ、2つの実装例を示した。同様のコンセプトはSF作品にも見られるが、我々はそのアーキテクチャを明示的に定義したことに意義がある。

将来の研究においては、リアルバーチャル・ブリッジの実装を単純化するソフトウェア・ツールキットが開発されるべきである。

最後に、リアルバーチャル・ブリッジの展開は、現実と仮想のオブジェクトを統合する新しいアプリケーションの出現を促進すると期待される。

参考文献

- 1) Arthur D Edelstein, Mark A Tsuchida, Nenad Amodaj, Henry Pinkard, Ronald D Vale, and Nico Stuurman: "Advanced methods of microscope control using μ Manager software", *Journal of Biological Methods*, 1 (2014)
- 2) Daniel Harley, Aneesh P. Tarun, Daniel Germinario, and Ali Mazalek: "Tangible VR: Diegetic tangible objects for virtual reality narratives", *Proceedings of the 2017 Conference on Designing Interactive Systems, DIS '17*, pp. 1253-1263
- 3) Honoka Ozaki, Yasushi Matoba, and Itiro Sio: "Can I gettoyin?: A box interface connecting real and virtual worlds", *Extended Abstracts of the 2018 CHI Conference on Human Factors in Computing Systems, CHI EA '18*, pp. D410:1-D410:4
- 4) Tomomi Takashina, Mika Ikeya, Tsutomu Tamura, Makoto Nakazumi, Tatsushi Nomura, and Yuji Kokumai: "Real-virtual bridge: Operating real smartphones from the virtual world", *Proceedings of the 2018 ACM International Conference on Interactive Surfaces and Spaces, ISS '18*, pp. 449-452
- 5) Tomomi Takashina and Yuji Kokumai: "Virtual reality environment to support activity in the real world: A case of working environment using microscope", *Proceedings of the 24th ACM Symposium on Virtual Reality Software and Technology, VRST '18*, pp. 60:1-60:2
- 6) Tomomi Takashina, Tsutomu Tamura, Makoto Nakazumi, Tatsushi Nomura, and Yuji Kokumai: "Toward a compact device to interact with a capacitive touch screen", *Proceedings of the 29th Annual Symposium on User Interface Software and Technology, UIST '16 Adjunct*, pp. 173-174

外部発表一覧 (2018年度)

題名	著者名	掲載誌名/発表学会・協会	巻号(年)・頁等
無容器法による中赤外発光ガラスの開発	吉本幸平, 江面嘉信, 上田 基	NEW GLASS	Vol. 34, No. 1, pp. 7 (2019)
四診システムによる不定愁訴の診断と治療	横山 楓	未来医学	No. 32, pp. 22-28 (2019)
Fluorescence characterization of heavily Eu ³⁺ -doped lanthanum gallate glass spheres with high quenching concentration	Kohei Yoshimoto, Yoshinobu Ezura, Motoi Ueda, Masafumi Mizuguchi	Optics Letters	Vol. 44, No. 4, pp. 875-878 (2019)
Automatic parameter setting for lens aberration control during product lot exposure	Yutaka Kanakutsu, Yukio Koizumi, Hironori Ikezawa, Shigeru Eto, Junji Ikeda, et al	SPIE Advanced Lithography, 2019	Proceedings Volume 10961, Optical Microlithography XXXII; 109610M (2019)
Standalone alignment technology enabling feed-forward compensation of OPO errors	Takehisa Yahiro, Junpei Sawamura, Sonyong Song, Sayuri Tanaka, Yuji Shiba, et al	SPIE Advanced Lithography, 2019	Proceedings Volume 10959, Metrology, Inspection, and Process Control for Microlithography XXXIII; 1095908 (2019)
RtoR 直描露光装置を用いた有機トランジスタ湿式作成プロセスの開発	小泉翔平, 堀 正和, 林田洋祐, 内藤一夫, 川端誠司, 石垣雄大, 中横 誠, 岩堀恒一郎, 鬼頭義昭	映像メディア学会技術報告(情報ディスプレイ)ディスプレイ技術シンポジウム 依頼公演	vol. 43, no. 7, IDY2019-24, pp. 7-9, 2019年3月.
民俗芸能3D データアーカイブの活用による継承支援	中川源洋, 笹垣信明	デジタルアーカイブ学会誌	2019年3巻2号 pp. 103-106
Development of 950 kV X-ray source with small focal spot using a linear accelerator	Norihito Matsunaga, Tomoya Sato, Atsushi Yamada, Masayuki Zaïke, Toshinori Tsuruya	9th Conference on Industrial Computed Tomography (iCT) 2019	Session: Short talks Thu 13: 50 Auditorium, 2019-03
Polarization characteristics of dark-field microscopic polarimetric images of human colon tissue	Toru Fujii, Naooki Saito	SPIE BiOS, 2019	Proceedings Volume 10890, 108902J (2019)
Multispectral Mueller matrix imaging dark field Microscope for biological sample observation	Naooki Saito, Toru Fujii	SPIE BiOS, 2019	Proceedings Volume 10890, 108901A (2019)
Practical method of cell segmentation in electron microscope image stack using deep convolutional neural network	Kohki Konishi, Takao Nonaka, Ichiro Sase	MICROSCOPY	Published: 28 March (2019)
Time-domain fluorescence lifetime imaging by nonlinear fluorescence microscopy constructed of a pump-probe setup with two-wavelength laser pulses	Fumihiko Dake, Yusuke Taki	Applied Optics	Vol. 57, Issue 4, pp. 757-762 (2018)
超広視界双眼鏡の開発	富田賢典, 福本 哲	Optics & Photonics Japan 2018	pp. 210-211
Real-virtual bridge: a modular mechanism to mediate between real and virtual objects	Tomomi Takashina, Yuji Kokumai	Association for Computing Machinery	Proceeding SA '18 SIGGRAPH Asia 2018 Posters Article No. 61
気液二相流解析を適用した顕微鏡用液浸水の自動供給システムの開発	和泉啓太, 荻本千津子, 八十川利樹	第32回 数値流体力学シンポジウム論文集	A08-2
ライトフィールド光学と光線再現表示: 3次元光線空間の2次元面への変換とその応用	岩根 透	映像情報メディア学会技術報告	42巻39号21-25
2.7 μm Mid-Infrared Emission in Highly Erbium-Doped Lanthanum Gallate Glasses Prepared Via an Aerodynamic Levitation Technique	Kohei Yoshimoto, Yoshinobu Ezura, Motoi Ueda	Advanced Optical Materials	Volume 6, Issue 8 (2018) 1701283
Discovery of Governing equations in Reproducing Kernel Hilbert space	大坪洋介	電子情報通信学会第21回情報論的学習理論ワークショップ	信学技報, vol. 118, no. 284, IBISML2018-65, pp. 159-166 (2018)
Theoretical Approach to Resolution Limit Calculations in Optical Microscopy with the use of Feynman Diagrams	Naoki Fukutake	Frontiers in Optics / Laser Science	OSA Technical Digest paper JTu2A.41 (2018)
微小流路システムによる iPS 細胞由来心筋細胞の可視光照射高速選択剥離/回収技術	川野 武志, 横山 楓, 高塚賢二, 瀧 優介	Medical Science Digest	2018年8月号
燃焼反応の機能性評価によるプロセス全体最適志向の新製品開発	小西洋平, 野崎 潔, 斎藤卓一	第26回品質工学研究発表大会予稿集	pp. 14-17
New deflectometry measurement system for a wide variety of sphere and asphere figures.	Takashi Miyawaki	European Society for Precision Engineering and Nanotechnology, (EUSPEN)	Conference Proceedings - 18th International Conference and Exhibition, pp. 117-118 2018
Light-field camera and display as information retrieval systems for three-dimensional images	Toru Iwane, Marie Shoda	Optical Engineering	57(6), 061616 (2018)
深層学習を用いた電子顕微鏡画像の細胞セグメンテーションの実用的な方法	小西功記, 野中崇雄, 佐瀬一郎	第74回 日本顕微鏡学会 学術講演会	Image Processing & Analyses (Biology & Material sciences) 2pF_16-5 (2018)
産業用 X 線 CT による 3 次元非破壊計測	坂口直史, 山田篤志	光技術コンタクト	2018年5月号
Additive 型 RtoR 微細配線形成技術に向けた光応答性表面処理材料の開発とイメージング質量分析評価	川上雄介	日本化学会第98春季年会(2018)	1 PC-103
Diagram Method for Resolution Limit Calculation in Laser Microscopy	Naoki Fukutake	JSAP-OSA Joint Symposia 2017	Optical Society of America (2017) paper 5p_A409_10
繰り返し誘導遷移を利用した超解像非線形蛍光顕微鏡	嶽 文宏, 福武直樹, 林 世莉, 瀧 優介	第65回 応用物理学会春季学術講演会	2018/03/19 19p-A302-4
Enhancement of ArF immersion scanner system for advanced device node manufacturing	Yujiro Hikida, Akira Hayakawa, Yoshihiro Teshima, Tomonori Dosho, Noriaki Kasai, et al.	SPIE Advanced Lithography, 2018	Proceedings Volume 10587, Optical Microlithography XXXI; 105870X (2018)
Low phonon energies and wideband optical windows of La ₂ O ₃ -Ga ₂ O ₃ glasses prepared using an aerodynamic levitation technique	Kohei Yoshimoto, Atsunobu Masuno, Motoi Ueda, Hiroyuki Inoue, Hiroshi Yamamoto, et al.	Scientific Reports (nature)	Vol. 7, Published: 30 March (2017)

Nikon Research Report Vol. 1

Published September 2019

Unauthorized reproduction prohibited

NIKON CORPORATION