

# 学位論文の要約

題目 角度分解 EELS で分析するナノ光学材料の伝搬モード

氏名 斉藤 光

## 1 章 序論：ナノ光学と電子エネルギー損失分光法(EELS)

近年、表面プラズモンポラリトン(SPP)等を用いた極微導波技術による光集積回路の実現が試みられている。角度分解 EELS では、SPP 等の伝搬モードに移送される運動量が、入射電子の散乱角に比例することを利用し、励起される伝搬モードのエネルギーと波数の分散関係を測定することができる。本研究では、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて、角度分解 EELS 実験を行い、3つのナノ光学材料における伝搬モードを分析した。

## 2 章 理論的背景：誘電関数と電子の非弾性散乱

電磁波に対する物質の応答は誘電関数で記述される。電子線に対する物質の応答は損失関数で記述され、この損失関数が誘電関数と結びついているため、EELS 実験により、物質の光学特性を調べることが可能となる。損失関数には EELS 実験で得られる情報のほとんどが含まれていると言ってもよいが、透過型電子顕微鏡を用いた EELS 実験により薄膜試料を分析する場合には、相対論効果と境界効果の寄与が EELS スペクトルに付加される。特に、境界効果は伝搬モード分析において重要であり、これには SPP や光学的導波モードが含まれる。

## 3 章 実験手法：透過型電子顕微鏡(TEM)と EELS

本研究では、TEM(JEM-9980 TKP1)を加速電圧 200 kV で用い、角度分解 EELS 実験を中心とした伝搬モード分析を行った。高角度分解能と長いカメラ長を得るために、Midgley の手法を用いた。

## 4 章 Si 薄片の Čerenkov 導波モード

高速電子線による EELS 分析の場合、高誘電率誘電体においては Čerenkov 放射の影響を考慮する必要がある。Čerenkov 放射はバンドギャップ内のエネルギー領域に励起されるため、バンドギャップ測定の妨げとなることが指摘されている。一方、理論計算によれば、境界項により体積項における Čerenkov 放射によるエネルギー損失確率が打ち消され、光学的導波モードの分散曲線上でエネルギー損失確率が極大値を取るという結果も報告されている。この光学的導波モードは、半導体薄片や半導体ナノワイヤなどの高誘電率誘電体ナノ構造において、内部を全反射により伝搬する電磁波モードである。この Čerenkov 放射は光学的導波モードと同じエネルギー領域で励起されるため混同しやすく、角度分解 EELS により分散関係を測定することで区別する必要がある。本研究では Si 薄片の角度分解 EELS スペクトルの厚さ依存性を厚さ 83 nm から 335 nm にわたって実験的に調べた。そ

の結果、Čerenkov 放射はバルクにおける分散関係に従わず、光学的導波モードの分散関係に従いながら励起されることが実証された。また、試料が厚くなると、低エネルギー側の低次の光学的導波モードの分散曲線上への励起強度分布の集中が観測された。この結果から、Čerenkov 放射はバルクの分散関係に近い低次の光学的導波モードと結合しやすいことが明らかとなった。

#### 5章 Al/SiO<sub>2</sub>/Al 多層膜の SPP 結合モード

金属薄膜では、両界面の SPP 同士のカップリングにより、短距離伝搬(SR)モードと長距離伝搬(LR)モードという性質の異なる 2 種類のモードが形成される。LR モードは伝搬距離が長く、SPP 導波モードセンサー等への応用に向いており、丈夫な構造を構築しやすい多層膜構造を用いることが提案されている。誘電体薄膜が 2 枚の同じ厚さの金属薄膜によって挟まれている構造では、両方の金属薄膜に励起された SR モード同士が結合し、対称結合した SR(SC-SR)モードと反対称結合した SR(AC-SR)モードへの分裂が生じる。同様の結合は LR モードにも生じる。本研究では Al/SiO<sub>2</sub>/Al 積層構造において、これまで測定されてこなかった計 4 つの SPP 結合モードの分散関係を角度分解 EELS で実測することを試みた。各層の厚さが異なる試料 A(Al(16 nm)/SiO<sub>2</sub>(23 nm)/Al(16 nm))と試料 B(Al(10 nm)/SiO<sub>2</sub>(61 nm)/Al(10 nm))の 2 種類について測定を行ったところ、いずれの試料からも、AC-SR、SC-SR、AC-LR モードの分散曲線は明瞭に観察された。両試料から得られた結果を比較すると、SC-SR モードの分散関係に大きな変化が観測されたが、これは主に SiO<sub>2</sub> 層の厚さの変化に起因すると解釈された。しかしながら、SC-LR モードについてはその低い励起確率のために、垂直入射条件での分析が困難であることが明らかになった。

#### 6章 Ag ナノアンテナの SPP

Ag ナノワイヤは均一な直径と平坦な表面を持つものを再現性よく合成できるという点で最も現実的な導波路の一つと考えられている。また、短い Ag ナノワイヤは、ファブリ・ペロー型の共振器として機能し、ナノアンテナと呼ばれる、Rossouw らによる走査型透過電子顕微鏡(STEM)を用いた EELS 実験により SPP 共鳴の励起確率分布が取得された。彼らはさらに励起確率分布から Ag ナノアンテナの SPP の分散関係を導いた。しかしながら、Ag ナノアンテナが長くなると、伝搬距離の短い高エネルギーの SPP は共鳴することができなくなるため、他の手法による分析が必要となる。本研究では、比較的長い 2.5 μm の長さの Ag ナノアンテナの SPP の分散関係を角度分解 EELS で測定したところ、2.6 eV までの分散関係を取得することができた。さらに SPP 共鳴を起こすような数 100 nm 程度の短い Ag ナノワイヤの SPP の分散関係を STEM-EELS で測定し、比較したところ、分散関係は長さに依存しないことが実験的に明らかとなった。

#### 7章 まとめと今後の課題

本研究により、角度分解 EELS は導波路中の光や SPP の分析に有効であることが実証された。5章で述べた多層膜構造における SC-LR モードを分析できる条件を検討すること等が今後の課題として挙げられる。