

( 続紙 1 )

京都大学	博士 ( 理学 )	氏名	齊藤 光
論文題目	角度分解 EELS で分析するナノ光学材料の伝搬モード		
( 論文内容の要旨 )			
<p>本論文では、金属表面に励起される表面プラズモンポラリトン (SPP) および誘電体中の光学的導波モードの伝搬特性を明らかにすることを目的に、透過電子顕微鏡に組み込まれた電子エネルギー損失分光法 (EELS) を用いて、角度分解スペクトルを計測することで、ナノ光学材料の構造に依存した伝搬モードの分散関係を明らかにすることに成功した。</p> <p>SPPおよび光学的導波モードの励起による高速電子の非弾性散乱は、40 <math>\mu\text{rad}</math>以下という小角度領域に生じるため、申請者は角度分解EELSの角度分解能を高めると同時に、スペクトルを散乱角と損失エネルギーの関数として一度に計測するための電子光学系を構築した。この装置を用い、申請者はまず相対論的な高速電子によって励起されるチェレンコフ放射を利用して、シリコン薄片中の光学的導波モードの角度分解EELS測定を行った。試料厚さに依存した分散関係を測定し、それとEELSの非弾性散乱断面積の計算結果との比較を行った結果、シリコン薄片中のチェレンコフ放射は薄片の境界効果により光学的導波モードと結合し伝搬することを解明した。また、試料が厚くなるにしたがい、光学的導波モードの数は増加し、それらの励起エネルギーは低エネルギーにシフトすることを見出した。さらに、厚い試料では低次のモードとチェレンコフ放射の結合が特に強く生じることを明らかにした。</p> <p>次に申請者は、金属と絶縁体から形成される多層膜構造中の界面に励起されるSPPの伝搬特性の解明を目的に、Al/SiO<sub>2</sub>/Al多層膜の角度分解EELS測定を行った。4つの界面からなるこの多層膜構造には、金属表面に誘起される電荷分布状態の違いにより、4種のSPPモードが存在し得る。界面に垂直方向から電子を入射することで、3種のSPPモードの測定に初めて成功した。さらに、多層膜中のSPPモードの分散関係を表す理論式を導出し、実験結果と比較することで、分散関係と絶縁膜厚さの依存性を検討した。その結果、絶縁膜が厚くなると対称短距離モードと反対称短距離モードの結合が特に弱くなることを明らかにした。また、この実験では対称長距離モードの励起が困難であったが、その原因は垂直入射におけるこのモードの励起確率の低さにあることを指摘した。</p> <p>さらに、1次元のナノ光学材料である銀ナノワイヤー表面に励起されるSPPの角度分解EELSを測定し、その伝搬特性を明らかにした。これまで、ナノワイヤーのSPP分散関係は、ワイヤーの両端で反射する電磁波の干渉効果を利用して実験的に測定されてきたが、本研究では、比較的長いワイヤーに対して干渉効果を利用せず、直接角度分解EELSで分散関係を測定することに成功した。分散関係の理論曲線と比較した結果、実験で得られた関係は銀表面に吸着している有機分子やワイヤーを支持している炭素薄膜の誘電率に影響されていることが判明し、SPPの分散関係は金属表面の化学状態に敏感であることを明らかにした。さらに、分散関係のワイヤー長依存性を実験的に調べた結果、分散関係はワイヤーの長さには依存しないことを明らかにした。</p>			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

近年、情報を伝達する媒体として光を利用する技術開発が盛んに行われているが、その中でもナノ構造体を利用して光信号を伝送する研究が精力的に進められている。本論文では、1次元の金属ナノワイヤーや2次元の薄膜、多層膜構造に着目し、それらのナノ構造体に励起される表面プラズモンポラリトン(SPP)や光学的導波モードの分散関係を測定することにより、その伝搬特性を明らかにした。

申請者が用いた実験手法は、透過電子顕微鏡に組み込まれた電子エネルギー損失分光法(EELS)で、特に、電子の非弾性散乱によって生じるスペクトルを散乱角と損失エネルギーの関数として同時に検出する、角度分解EELS法が用いられた。SPPや光学的導波モードの励起に伴う非弾性散乱は極めて小角度に散乱されるため、申請者は高角度分解能を実現する電子光学系を構築した。

誘電体中に励起される光学的導波モードの研究において、申請者は高速電子により励起されるチェレンコフ放射に着目した。高い誘電率を有するシリコン薄片中に高速電子が入射すると、シリコン中にはチェレンコフ放射が生成し、それは薄片の内表面で全反射され導波すると考えられていた。角度分解EELS法により光学的導波モードの分散関係を測定した結果、チェレンコフ放射は境界効果によりシリコン内部で光学的導波モードと結合し伝搬することを初めて実証した。さらに、その結合の強さはシリコンの厚さが厚くなるほど強くなり、低エネルギー領域に励起される低次の光学的導波モードと強く結合していることを明らかにした。

更に、申請者は金属-絶縁体多層膜構造の界面に励起されるSPPの伝搬特性を解明するために、Al/SiO<sub>2</sub>/Al多層膜を作製しその角度分解EELS測定を行った。4界面から成るこの構造には4種のSPPモードが励起可能であることが理論的に知られているが、界面に垂直に電子線を入射することで、3種のSPPモードの分散関係を測定することに初めて成功した。申請者はさらに、それぞれのSPPモードの分散関係の理論式を導出し、実験結果と比較することにより実測されたSPPモードの帰属を行った。また、多層膜中の絶縁膜の厚さに依存した伝搬特性を明らかにした。特に、3種のSPPモードのうち対称短距離モードと反対称短距離モードは、絶縁膜が厚くなると高波数側で縮退することを見出した。さらに、対称長距離モードが実測できなかった理由として、垂直入射における励起確率の低さを指摘した。

また、1次元の伝搬モードの例として、銀ナノワイヤーを合成し、1本のワイヤーから角度分解EELSを測定することに成功した。実験的に得られたSPPの分散関係は、理論曲線から僅かに低エネルギー側にシフトしていることを見出した。これは、銀ナノワイヤー表面に誘電率の高い物質、すなわち分散剤として用いられている有機分子が吸着していることによるものと結論した。さらに、長さの異なるナノワイヤーから分散関係を測定した結果、長さ依存性はないことを実験的に初めて明らかにした。

以上のように、申請者は異なるナノ光学材料に対して角度分解EELS法を適用し、構造に依存したSPPや光学的導波モードの伝搬特性について深い知見を明らかにした。これらの成果は、伝搬モードの分散関係を直接測定することによって初めて明らかにされたもので、その重要性は高く評価できる

よって、本論文は博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成26年1月14日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 年 月 日以降