T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	電子線励起発光顕微法による表面プラズモン-光変換の研究
Title(English)	
著者(和文)	鈴木喬博
Author(English)	Takahiro Suzuki
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第7876号, 授与年月日:2010年3月31日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山本 直紀
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第7876号, Conferred date:2010/3/31, Degree Type:Course doctor, Examiner:
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

電子線励起発光顕微法による
表面プラズモン-光変換の研究

東京工業大学　理工学研究科　物性物理学専攻
06D02081 鈴木喬博

平成 22 年 2 月 19 日

目 次

第 1 章　序論 **1**
1.1　はじめに 1
1.2　表面プラズモン 1
1.2.1　平面上の表面プラズモン (非相対論的取り扱い) 3
1.2.2　平面上の表面プラズモン (相対論的取り扱い) 4
1.2.3　表面プラズモンの減衰距離 7
1.2.4　周期的な表面を伝播するプラズモンの定在波モード 9
1.2.5　局在表面プラズモン 11
1.3　固体と高速電子との相互作用 11
1.3.1　高速電子における表面プラズモン励起 12
1.4　遷移放射 16
1.4.1　等速荷電粒子による電磁場 16
1.4.2　単一界面からの遷移放射 18
1.5　従来の研究 22
1.6　本研究の目的 34

第 2 章　実験装置・手法 **35**
2.1　光検出装置組み込み型透過電子顕微鏡 35
2.1.1　透過型電子顕微鏡 36
2.1.2　光検出装置 38
2.1.2.1　装置性能 38
2.2　試料作製方法 42
2.2.1　銀蒸着 42
2.3　測定方法 43
2.3.1　ミラー像 43
2.3.2　放射角度分解発光スペクトル像 44
2.3.2.1　放射角度分布 44
2.3.2.2　測定方法 47
2.3.2.3　座標変換 47
2.3.2.4　立体角補正 48
2.3.3　ラインプロファイル 51

第 3 章　単一ステップ構造における SPP 放射 **53**
3.1　目的 53
3.1.1　試料形状 53
3.2　ステップ端からの放射の電子線入射位置依存性 53

3.2.1 光検出方向がステップ端と垂直な場合 54
3.2.2 光検出方向がステップ端と平行な場合 54
3.2.3 ラインプロファイル像の放射角度変化 55
3.3 ステップ端からの放射の放射角度分解発光スペクトル像 59
3.4 考察 62
3.4.1 発光過程のモデル 62
3.4.2 SPP 分散曲線の導出 66
3.4.3 ステップ端における SPP-光変換効率の導出 67
3.4.4 SPP-光変換過程のモデル 70
3.5 結論 70

第 4 章 1 次元周期構造におけるプラズモン発光 73
4.1 目的 73
4.1.1 試料形状 73
4.2 電子線励起発光顕微法による 1 次元周期構造の観察 73
4.2.1 放射角分解発光スペクトル 74
4.2.2 1 次元周期構造中の分散曲線と放射角依存 76
4.2.3 ラインスキャン 76
4.3 プラズモニックバンドギャップの表面形状依存性 79
4.3.1 放射角分解発光スペクトルの表面形状依存性 79
4.3.2 バンド端の SPP の電子線入射位置依存性 81
4.4 考察 83
4.4.1 電子線励起発光顕微法による発光過程 83
4.4.1.1 平面波的 SPP 83
4.4.1.2 バンドギャップ近傍の SPP 86
4.4.2 バンドギャップ幅 88
4.4.3 バンドギャップにおける放射強度 90
4.5 結論 91

第 5 章 1 次元プラズモニック結晶中の Cavity による SPP-光変換 93
5.1 目的 93
5.1.1 試料形状 93
5.2 Cavity に局在する SPP モード観察 93
5.3 Cavity モードの欠陥幅依存性 97
5.4 考察 100
5.4.1 SPP の反射の位相シフト 100
5.4.1.1 位相シフトが固定している場合 103
5.4.1.2 位相シフトがエネルギーによって変化する場合 105
5.4.2 Cavity モードの強度変化 108
5.4.3 バンドギャップ内の SPP 伝播距離 110
5.5 結論 111

第 6 章 総括 113

参考文献 **115**

研究業績 **117**

謝辞 **123**

第1章　序論

1.1　はじめに

表面プラズモンポラリトン (SPP) は金属-誘電体界面に励起する 2 次元的な表面電荷の縦波モードである．1957 年に Ritchie によって電子損失分光スペクトル (EELS) の理論として提唱され [1]，その後 Otto と Kretschmann によってプリズムをつかった SPP 観察方法が報告されると [2, 3]，様々な研究が行われた．近年，光の波長程度のナノ構造を作製した金属表面において，金属表面に励起する SPP の分散関係にバンドギャップが生じるプラズモニック結晶が報告されて以来，光の回折限界を超えてナノメーターオーダーの領域に局在する SPP は，次世代の光集積回路における情報伝達キャリアとして注目されている [4–8]．そのため SPP から光へ，または光から SPP への変換効率，変換特性であったり，SPP がどのような空間分布をしているのかといった基礎的な物性を調べることが重要となる．また，金薄膜に作製した SPP の導波路における SPP の空間分布の観察 [9] や導波路を伝播した SPP による光変換の測定，SPP 導波路にパルス光を当てることで SPP の伝播速度の制御を行うなど，様々な研究がなされている．これらの研究において，透過光や反射光の測定を行うことで，SPP の分散測定をするものや，近接場走査型光学顕微鏡 (NSOM) を用いて，SPP の電場分布を観察するなど，光を SPP 励起源とした研究が行われている．しかしながら，作製したナノ構造における SPP の性質を調べる上では高い空間分解能が必要と考えられるが，光を励起源とした場合，その空間分解能はあまり高くはない．それに対して，高速に加速した電子を金属表面や金属薄膜に入射することでも SPP を励起することは可能である．近年 SEM-CL 法を利用してプラズモニック結晶からの発光を検出する実験も行われている．しかしながら，プラズモニック結晶や SPP-光変換に対する研究では発光スペクトルの放射角度依存性を調べることも重要となるが，検出光は広い放射角度範囲にわたって積分されてしまっている．これらプラズモニクスの研究の進歩において高い空間分解能を持った上で，放射角度依存性を含て放射光を測定できることが重要となる．

1.2　表面プラズモン

金属内のプラズマ振動とは伝導電子気体の集団的な運動であり縦波として金属内を伝播していく．そのプラズマ振動の量子をプラズモンといい, 固体内部を伝播するプラズモンをバルクプラズモン (図 1.1) という．バルクプラズモンは縦波なので横波である電磁波とはエネルギーの交換ができず発光はしない．

これに対し, 表面や界面に沿って伝播する表面プラズモン (図 1.2) は表面の存在により表面の法線方向では並進対称性が失われるため, 表面に横波のモードが存在し, 電磁場とのエネルギー交換が可能であり発光することができる．表面プラズモンには, 微粒子など曲

率を持った表面に局在する局在表面プラズモンモードや, 表面や界面を伝播するプラズモンモードがある.

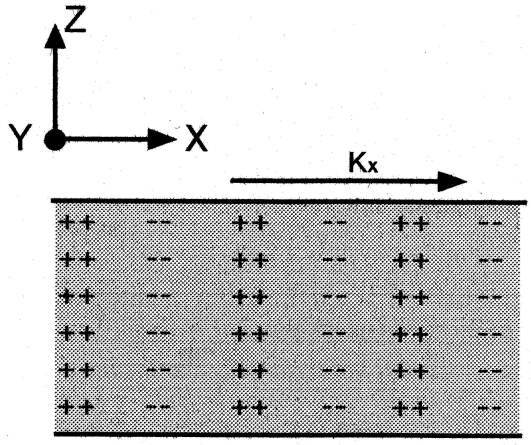

図 1.1: バルクプラズモンの電荷密度分布. k_x は x 方向に伝播する電荷密度波の波数ベクトルである

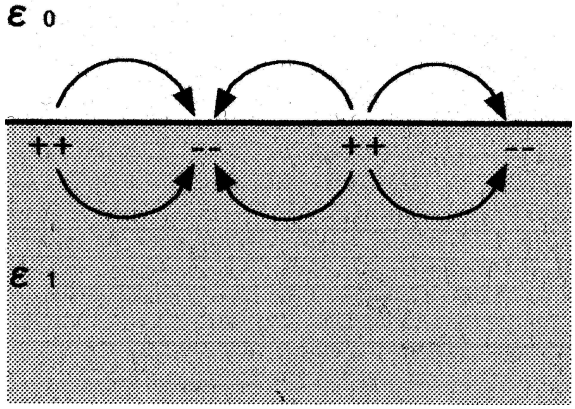

図 1.2: 表面プラズモン (単一界面) の電荷分布と p 偏光に対する電気力線

1.2.1 平面上の表面プラズモン (非相対論的取り扱い)

$z<0$ の半空間が誘電率 ε の金属で占められ,$z>0$ の半空間が真空で占められているとき,$z=0$ の表面に現れる誘導電荷分布およびそれが作る静的電場分布について考える．非相対論的取り扱いでは，外部電荷は存在しないの場合のラプラス方程式が成り立つ.

$$\nabla^2\varphi(r)=0 \tag{1.1}$$

この方程式の解として

$$\varphi_0(r)=A\cos kx\cdot e^{-kz}\quad(z>0) \tag{1.2a}$$
$$\varphi_1(r)=A\cos kx\cdot e^{kz}\quad(z<0) \tag{1.2b}$$

が存在する. これは z 方向には境界面から離れるに従い指数関数的に減衰する波を表している. 境界条件は, 面法線方向の単位ベクトルを $\mathbf{n}$ として

$$E_0\times\mathbf{n}=E_1\times\mathbf{n} \tag{1.3a}$$
$$D_0\cdot\mathbf{n}=D_1\cdot\mathbf{n} \tag{1.3b}$$

である. 電場の面内成分は各領域で

$$E_{0x}(x,z)=Ak\sin kx\cdot e^{-kz}\quad(z>0) \tag{1.4a}$$
$$E_{1x}(x,z)=Ak\sin kx\cdot e^{kz}\quad(z<0) \tag{1.4b}$$

となるから, 上の解は電場についての境界条件を自動的に満たしている. 次に電束密度の面垂直成分は

$$D_{0z}(x,z)=\varepsilon_0Ak\cos kx\cdot e^{-kz}\quad(z>0) \tag{1.5a}$$
$$D_{1z}(x,z)=-\varepsilon Ak\cos kx\cdot e^{kz}\quad(z<0) \tag{1.5b}$$

となり,z=0 で境界条件を満たすには

$$\varepsilon(\omega)=-\varepsilon_0 \tag{1.6}$$

が成り立たなければならない. これが平面上に生じる表面プラズモンの固有振動数 ω_s を決定する条件式である.

また, 境界面に誘導される電荷分布は, 境界面を含む底面 S の円筒状の閉曲面に対してガウスの法則を適用し,

$$\varepsilon_0\oint_S E\cdot dS=\left[E_{0z}(x,0)-E_{1z}(x,0)\right]S=\int\sigma dV=\sigma S \tag{1.7}$$

から求められる. ここで,(1.5b),(1.6) 式を用いると金属中の電場は

$$E_{1z}(x,z)=D_{1z}/\varepsilon=-Ak\cos kx\cdot e^{kz}=-E_{0z}(x,z) \tag{1.8}$$

となるから, 表面の電荷分布は

$$\sigma(x)=2\varepsilon_0kA\cos kx \tag{1.9}$$

のように求まる.

このような表面電荷および電場の分布について考察する. 金属に対する Drude モデルを用いた場合に誘電率は

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \tag{1.10}$$

と表されるので,(1.6) 式が成り立つのは $\omega_s = \omega_p/\sqrt{2}$ の角振動数で振動する電場に対してである. したがって, 実際の金属表面にここで求めた静的な電場分布が現れることはない. しかし, この静的な電場が波数 k に関係して表面に局在する理由は次のように理解できる.

$k \to 0$ の極限では, 電荷は一様に表面に広がり, 真空中の表面に垂直な電場

$$E_{0z}(x, z) = Ak \cos kx \cdot e^{-kz}$$

は二次元表面電荷の作る静電場の表式 $E_0 = \sigma/2\varepsilon_0$ に近づく. また金属中では $\omega \to 0$ で実際には $\mathrm{Re}[\varepsilon] \to -\infty, \mathrm{Im}[\varepsilon] \to \infty$ となるから電場は存在できないが,$\varepsilon(0) = -\varepsilon_0$ が成り立つとすれば同じ静電場の式に近づく. 次に k が有限な場合には,(1.9) 式は $L = 1/k$ の周期を持つ 1 次元的な表面電荷分布を表すことになる. この電荷分布が作る電場は表面近傍では有限の大きさを持つが, 表面に垂直方向 (z 方向) に離れるにしたがい隣接する電荷分布の作る電場が打ち消し合い距離 L で減衰すると考えることができる.

1.2.2 平面上の表面プラズモン (相対論的取り扱い)

前節で, 表面に局在する電磁的励起モードが存在することが分かった. 次に, 時間的に変動する励起モードの表式を遅延効果を取り入れた相対論的取り扱いにより導く. それにはラプラス方程式の代わりに波動方程式を解かねばならない. 同時に平面上の表面プラズモンの分散関係が求められる.

電場を横成分 $\boldsymbol{E}_T$ と縦成分 $\boldsymbol{E}_L$ に分けると, それぞれの成分は

$$\nabla \cdot \boldsymbol{E}_T = 0 \tag{1.11a}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{E}_L = 0 \tag{1.11b}$$

を満たす. 磁場は横成分しか存在しない. ここでは媒質中を伝播する電磁波を考えるので, 電場として横成分電場のみを扱う. 横成分電場は波動方程式

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{v^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)\boldsymbol{E}_T = \frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{J}(r, t) \tag{1.12}$$

に従う. 右辺が 0 である場合に, この方程式は位相速度 v で伝播する電磁波の解を持つ.

$z > 0$ の領域が誘電率 ε_1 の誘電体 (媒質 1) で占められ,$z > 0$ の領域が誘電率 ε_2 の金属 (媒質 2) で占められている場合を考える.$z = 0$ の表面では (1.2a),(1.2b) 式の境界条件が成り立たねばならない. 横成分電場に対しては $E_T \cdot k = 0$ となるので, 媒質 1 における電場は波数ベクトル k_1 を持つ平面波で次のように表せる.

$$\boldsymbol{E}_1(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} E_{1x} \\ 0 \\ E_{1z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -E_1 \cos\theta \\ 0 \\ E_1 \sin\theta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{1x} \\ 0 \\ -E_{1x}\frac{k_{1x}}{k_{1z}} \end{pmatrix} \tag{1.13}$$

ここで

$$E_{1x} = E_1 \exp(i(k_{1x}x + k_{1z}z - \omega t)) \tag{1.14}$$

である. 波動方程式は横成分電場に対して,

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{v^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)\boldsymbol{E}_T = \left(-k_1^2 + \frac{\varepsilon_1}{c^2}\omega^2\right)\boldsymbol{E}_T = 0 \tag{1.15}$$

となるから

$$k_{1x}^2 + k_{1z}^2 = \varepsilon_1 \frac{\omega^2}{c^2} \tag{1.16}$$

が得られる.ε_1 は正であるから, 左辺も正である. 同様に媒質 2 における電場は次のように表せる. $E_{2x} = E_2 \exp(i(k_{2x}x + k_{2z}z - \omega t))$ として,

$$\boldsymbol{E}_2(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} E_{2x} \\ 0 \\ E_{2z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -E_2 \cos\theta \\ 0 \\ E_2 \sin\theta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{2x} \\ 0 \\ -E_{2x}\frac{k_{2x}}{k_{2z}} \end{pmatrix} \tag{1.17}$$

となる. 波動方程式より

$$k_{2x}^2 + k_{2z}^2 = \varepsilon_2 \frac{\omega^2}{c^2} \tag{1.18}$$

が導かれる. 金属では $\varepsilon_2(\omega)$ は負になりえるので, その場合左辺も負になる. 特に $k_{2x}^2 > 0, k_{2z}^2 < 0$ の場合, 表面から離れるにしたがい減衰し, 表面に沿って進行する波を表すので以下ではそのような波を考える.

境界条件 (1.3a) 式より

$$E_{1x} = E_{2x}$$

であるから,$z = 0$ 面上の任意の位置 $\mathbf{r}$ に対して $E_{1x} = E_{2x}$ となるには,$E_1 = E_2$ および $k_1 \cdot \mathbf{r} = k_2 \cdot \mathbf{r}$ の関係が成り立たねばならない. すなわち

$$k_{1x} = k_{2x} \tag{1.19}$$

となる. また, 境界条件 (1.3b) 式より

$$\varepsilon_1 E_{1x}\frac{k_{1x}}{k_{1z}} = \varepsilon_2(\omega) E_{2x}\frac{k_{2x}}{k_{2z}} \tag{1.20}$$

すなわち

$$\varepsilon_1 k_{2z} = \varepsilon_2(\omega) k_{1z} \tag{1.21}$$

が得られる.(1.16), (1.18), (1.21) 式より k_{1z}, k_{2z} を消去して,

$$\varepsilon_1 k_{1x}\left(\varepsilon_2\frac{\omega^2}{c^2} - k_{2x}^2\right)^{\frac{1}{2}} = \varepsilon_2(\omega) k_{2x}\left(\varepsilon_1\frac{\omega^2}{c^2} - k_{1x}^2\right)^{\frac{1}{2}}$$

となり $k_{1x} = k_{2x} = k_x$ とおいて

$$\varepsilon_1^2\left(\varepsilon_2\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2\right) = \varepsilon_2^2(\omega)\left(\varepsilon_1\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2\right)^{\frac{1}{2}}$$

となる. これを k_x について解いて

$$k_x = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\varepsilon_1\varepsilon_2}{\varepsilon_1+\varepsilon_2}} \tag{1.22}$$

または

$$\omega = ck_x\sqrt{\frac{\varepsilon_1\varepsilon_2}{\varepsilon_1+\varepsilon_2}} \tag{1.23}$$

を得る. これが平面状表面における表面プラズモンの分散関係を表す式である.$\varepsilon_2(\omega)$ は一般に複素数であるので, 媒質 2 の誘電率を $\varepsilon_2(\omega) = \varepsilon_2' + i\varepsilon_2''$ と書くと,

$$k_x = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\varepsilon_1(\varepsilon_2'+i\varepsilon_2'')}{\varepsilon_1+\varepsilon_2'+i\varepsilon_2''}} \tag{1.24}$$

となるので, k_x も複素数になる.

この分散関係を二つの極限で考える. はじめに,$k_x \to 0$ の極限では,$\omega \to 0$ となり $|\varepsilon_2| \gg \varepsilon_1$ となるから, 分散曲線は

$$\omega = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_1}}ck_x \tag{1.25}$$

の直線に漸近する. 境界条件 (1.3b) 式より $\varepsilon_1 k_{2z} = \varepsilon_2(\omega)k_{1z}$ であるから, この領域では $|\varepsilon_2| \gg \varepsilon_1$ より,$|E_{2z}| \ll |E_{1z}|$ となる. また (1.19) より $\varepsilon_1 k_{2z} = \varepsilon_2(\omega)k_{1x}$ であるので $k_{2z} \gg |k_{1z}|$ となる.(1.21) から

$$k_x^2 = \frac{\omega^2}{c^2}\frac{\varepsilon_1\varepsilon_2}{\varepsilon_1+\varepsilon_2} \tag{1.26a}$$

$$k_{1z}^2 = \varepsilon_1\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2 = \frac{\omega^2}{c^2}\frac{\varepsilon_1^2}{\varepsilon_1+\varepsilon_2} \tag{1.26b}$$

$$k_{2z}^2 = \varepsilon_2\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2 = \frac{\omega^2}{c^2}\frac{\varepsilon_2^2}{\varepsilon_1+\varepsilon_2} \tag{1.26c}$$

と書ける. (1.10) 式から $\omega \le \omega_s$ で ε_2 や $\varepsilon_1+\varepsilon_2$ は負となるので, この式から k_x は実数,k_{1z} は大きな虚数成分を持つことが分かる. したがって, 媒質 1 中の電場は

$$E_{1x} = E_x \exp(i(k_x x - \omega t) - \mathrm{Im}[k_{1z}]z) \tag{1.27a}$$

$$E_{1z} = -\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}E_{1x} \tag{1.27b}$$

$$k_{1z} = \sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}k_x \tag{1.27c}$$

媒質 1 での電場は

$$E_{2x} = E_x \exp(i(k_x x - \omega t) - \mathrm{Im}[k_{2z}]z) \tag{1.28a}$$

$$E_{2z} = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}E_{1z} = \sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}E_{1x} \tag{1.28b}$$

$$k_{2z} = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}k_{1z} = \sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}k_x \tag{1.28c}$$

となる.k_{1z} や k_{2z} は (1.26a), (1.26b), (1.26c) 式から ε_2 に吸収を無視した Drude モデルの表式を用いれば $\omega \leq \omega_s$ で純虚数となる. したがって, 電場は境界面近傍に局在した波 (エバネッセント波) となる.E_{1z} と E_{2z} は反対の符号であり, 境界面の分極電荷により作られる電場であることが分かる. 境界面に現れる誘導電荷密度はガウスの法則を用いて次のように導かれる.

$$\sigma(x.t) = \varepsilon_0 \left(\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}} + \sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}} \right) E_x \exp(i(k_x x - \omega t)) \tag{1.29}$$

次に,$k_x \to \infty$ の極限を考える. この極限では (1.22) 式より

$$\varepsilon_1 + \varepsilon_2 = 0 \tag{1.30}$$

が満たされなければならない. 簡単に, 吸収を無視した Drude モデルを用いると

$$\varepsilon_2(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} = -\varepsilon_1 \tag{1.31}$$

となるから, 上式は

$$\omega_s = \frac{\omega_p}{\sqrt{1+\varepsilon_1}} \tag{1.32}$$

のとき満たされる. すなわちこの極限では角振動数は一定値 ω_s に近づく. 以上から (1.22) または (1.23) 式で表される表面プラズモンの分散関係は図 1.3 のようになる.

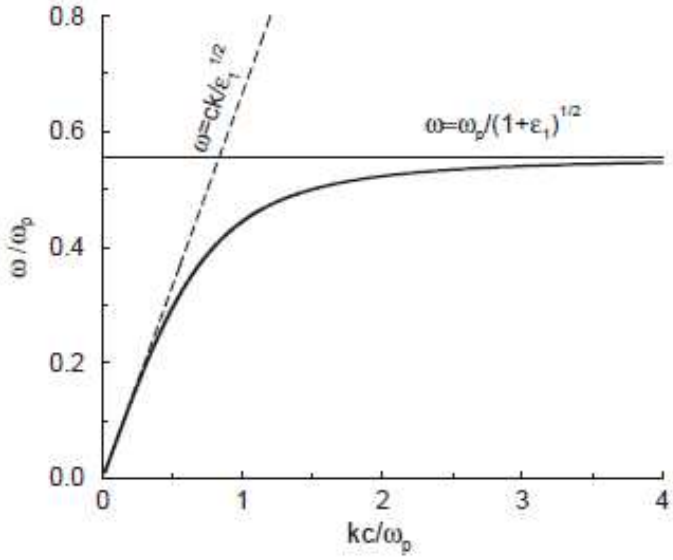

図 1.3: 相対論的取り扱いをした表面プラズモンの分散関係

1.2.3 表面プラズモンの減衰距離

表面プラズモンが表面に平行に進むとき,k_x の虚数部のために減衰が起きる. これは,(1.22) 式から分かるように $\varepsilon_2(\omega)$ が一般に複素数であること, すなわち誘電損失が起こることに

由来している.x 方向 (面内方向) における SPP 減衰距離 $L_{//}$ は

$$\begin{aligned} L_{//} &= 1/\mathrm{Im}[k_x] \\ &= \mathrm{Im}\left[\frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\varepsilon_1(\varepsilon_2' + i\varepsilon_2'')}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2' + i\varepsilon_2''}}\right] \end{aligned} \tag{1.33}$$

で定義できる.

例として, 媒質 1 を真空 ($\varepsilon_1 = 1$), 媒質 2 を銀とすると,E=3.11eV(λ =400nm) の光に対して銀の複素屈折率は $\tilde{n} = n + ik = 0.173 + 1.95i$, 複素誘電率は $\tilde{\varepsilon} = \varepsilon' + i\varepsilon'' = (n^2 - k^2) + i2nk$ から $\tilde{\varepsilon} = -3.77 + 0.675i$ である. これを (1.33) 式に入れて計算すると,$L_{//} = 11.2\mu$ m となる. 図 1.4 に 1eV から 3.5eV の間で計算した SPP 減衰距離を示す. 縦軸の減衰距離は対数表示している.

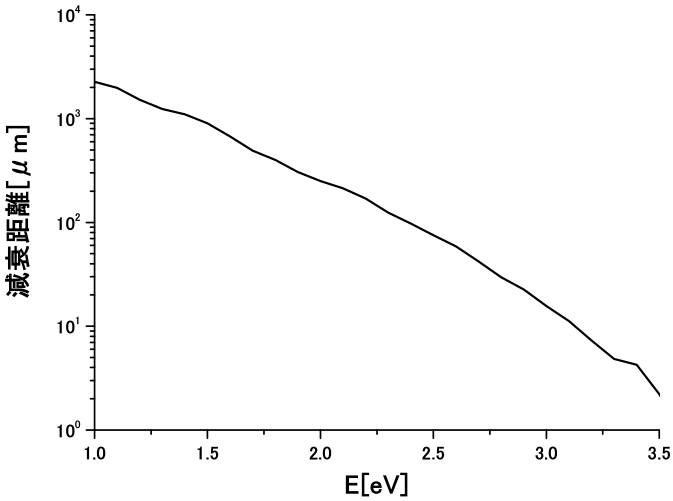

図 1.4: Ag における SPP の減衰距離. プロットはログ表示である

次に, 媒質内部への進入距離 L_z について考える. 上と同様に $L_z = 1/\mathrm{Im}[k_{2z}]$ と定義されるので

$$\begin{aligned} \mathrm{Im}[k_{2z}] &= \mathrm{Im}\left[\left(\frac{\omega^2}{c^2}\frac{\varepsilon_2^2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}\right)^{\frac{1}{2}}\right] \\ &= \frac{\omega}{c}\frac{-1}{(\mid \varepsilon_1 + \varepsilon'_2 \mid)^{\frac{1}{2}}}\left(\varepsilon_2' + \frac{1}{2}\frac{\varepsilon_2''^2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2'}\right) \\ &\approx \frac{\omega}{c}\frac{-\varepsilon_2'}{(\mid \varepsilon_1 + \varepsilon_2' \mid)^{\frac{1}{2}}} \end{aligned} \tag{1.34}$$

と書ける. 媒質 1 を真空 ($\varepsilon_1 = 1$), 媒質 2 を銀とすると,E=3.11eV(λ =400nm) の光に対して進入距離は L_z=172nm となる.

真空側への電場の広がりは

$$\mathrm{Im}[k_{1z}] = \mathrm{Im}\left[\left(\frac{\omega^2}{c^2}\frac{\varepsilon_1^2}{\varepsilon_1+\varepsilon_2}\right)^{\frac{1}{2}}\right] \cong \frac{\omega}{c}\frac{\varepsilon_1}{(\mid \varepsilon_1+\varepsilon'_2 \mid)^{\frac{1}{2}}} \tag{1.35}$$

で決まる. 媒質 1 を真空 ($\varepsilon_1 = 1$), 媒質 2 を銀とすると,E=3.11eV(λ =400nm) の光に対して進入距離は L_z=680.0nm となる. 図 1.5 に銀における金属側，真空側の進入距離を示す. 金属側では誘電損失が大きいためその進入長は真空側と比べて小さくなっているのが分かる.

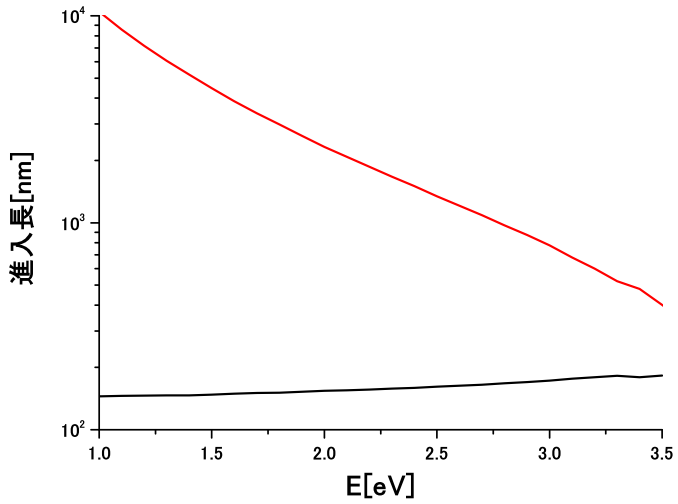

図 1.5: 銀における SPP の進入深さ．黒線が金属 (銀) 側の進入深さであり赤線が真空側の広がりを表している

1.2.4 周期的な表面を伝播するプラズモンの定在波モード

周期的な凹凸を持つ表面に伝播するプラズモンが, 表面の凹凸より Bragg 反射されることによって SPP 定在波が生じる. このモードについて説明する.

今図 1.6 のような x 方向にだけ波打っている形状の表面を考える. この表面が周期 λ_s で波打っているとすると, 伝播する表面プラズモンの波数ベクトルの x 方向成分 k_x が

$$k_x = \pm K = \pm\frac{\pi}{\lambda_s} \tag{1.36}$$

の関係式を満たすときに Bragg 反射される.$\pm x$ 方向に進行するプラズモンは，Bragg 反射により進行方向を反転した波と干渉し合い定在波を形成する. このときの電荷分布には二つのパターンがある (図 1.7) この二つの定在波モードは, 波数は等しいがエネルギーが異なるので, エネルギーギャップが開く (図 1.8) このエネルギーギャップの中心位置やギャップ幅は W.L.Barnes らによって理論的に求められている [16]

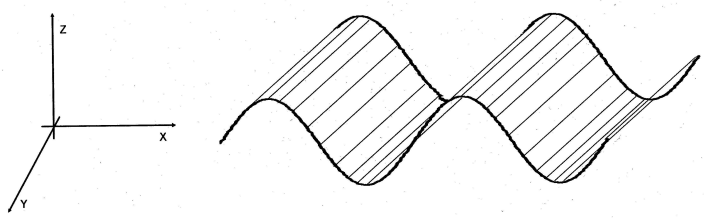

図 1.6: 波状表面の模式図

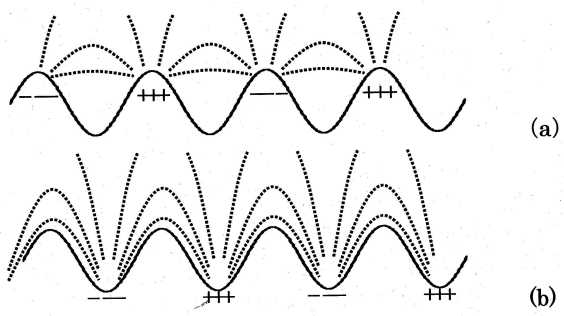

図 1.7: 定在波モードの電荷分布と電気力線

表面の形状 $S(x)$ をフーリエ展開することで

$$S(x) = \sum_{n=1} d_n \sin(nKx) = d_n \sin(\frac{n\pi}{\lambda}x) \tag{1.37}$$

とかけるとする．ここで n 次のフーリエ係数を d_n とした．このときギャップ幅とギャップの中心位置は

$$\left(\frac{\omega_n^+}{c}\right)^2 - \left(\frac{\omega_n^-}{c}\right)^2 = \frac{4K^2}{\sqrt{-\varepsilon_1\varepsilon_2}}(Kd_n)\left(1 - \frac{7}{2}(Kd_n)^2\right) \tag{1.38}$$

$$\frac{1}{2}\left\{\left(\frac{\omega_n^+}{c}\right)^2 + \left(\frac{\omega_n^-}{c}\right)^2\right\} = \left(\frac{\omega_0}{c}\right)^2 \left\{1 - (Kd_n)^2\right\} \tag{1.39}$$

となる. ここで ω_n^+, ω_n^- は上下のギャップ端での角周波数,ω_0 はギャップを考えないときに波数 K で SPP がとる角周波数,c は真空中の光速度を示している. また, 表面は誘電率 ε_1 の物質と誘電率 ε_2 の物質との界面であるとして考えた.

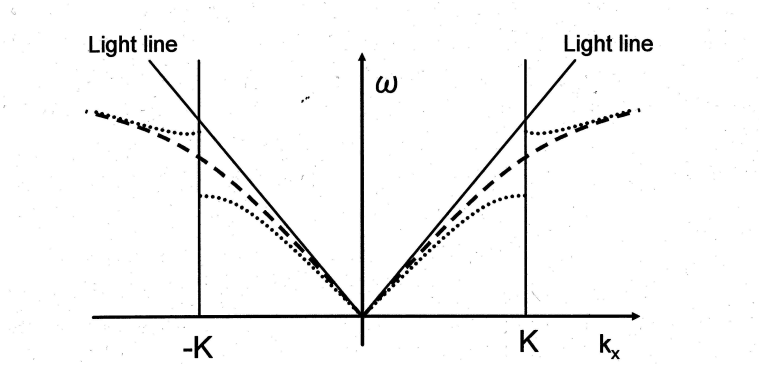

図 1.8: 平らな表面における表面プラズモンの分散関係 (dashed line) と波状表面における表面プラズモンの分散関係 (dotted line)．波状表面では $k_x = \pm K$ でエネルギーギャップができている. エネルギーの小さいほうが図 1.7(a) の電荷分布に対応し, 大きいほうが (b) に対応している.

1.2.5 局在表面プラズモン

金属微粒子などの表面上に局在する電子の集団運動は局在表面プラズモン (Locarized Surface Plasmons ; LSP) と呼ばれている. 誘電率 ε_0 の媒質 (真空, 酸化膜など) に囲まれている誘電率 ε_1 の孤立した微粒子の固有モードを決定する条件は次式で与えられる.

$$\frac{\varepsilon_1(l+1)}{l} + \varepsilon_0 = 0 \tag{1.40}$$

電子ガスモデルによる金属微粒子の場合 LSP のプラズマ振動数は次の式で与えられる [23].

$$\omega = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \frac{l+1}{l}\varepsilon_0}} \tag{1.41}$$

このように半無限平行平板の場合は固有振動数は波数に依存していたが, 球形の媒質に対しての固有振動数はルジャンドル関数の次数 l に依存していることが分かる. また局在表面プラズモンは波数保存則を破ることなくフォトンを放出することができる.$l = 1$ に対応する最低次のモードは微粒子内部においてダイポールを形成する. このモードは 10nm 以下の径を持つ微粒子で支配的になる. 粒子径が大きくなるにつれ高次のモードの励起確率が大きくなり,l が大きくなるに従って局在表面プラズモンの固有振動数は平行平面に対しする表面プラズモンの固有振動数に漸近的に近づく.

1.3 固体と高速電子との相互作用

高速電子が固体に入射すると様々な相互作用が生じ，電子エネルギーの損失が起こる．考えられるエネルギー損失は，発光過程と非発光過程に分けることができる．発光過程としてのエネルギー損失には

(1) 特性 X 線の放射

(2) カソードルミネッセンス

(3) 制動放射

(4) チェレンコフ放射

(5) 遷移放射

などが挙げられる．1,2 は固体内の離散的な電子状態の遷移に伴うものでスペクトルも離散的になる．また 3，4，5 は連続的なスペクトルとして現れる．そのほかにも荷電粒子を周期的な凹凸を持つ表面近くに入射したときに生じる Smith Purcell 放射がある [10]．また非発光性のエネルギー損失としては

(1) 2 次電子励起

(2) 表面プラズモン励起

などがある．

1.3.1 高速電子における表面プラズモン励起

薄膜に電子線が入射したとき，電子線は薄膜物質内部で様々な励起過程を通してエネルギーを失い非弾性散乱される．固体中の励起過程の中で 100keV 以上のエネルギーの高いものは主に内殻電子を励起する電離損失過程であるが，1eV〜10eV の光学領域で重要なものはプラズモン励起とバンド間遷移による励起過程である．この光学領域のエネルギー損失過程にはチェレンコフ放射と遷移放射によるフォトンの励起も含まれている．

平板状の薄膜物質に表面に対して垂直方向から電子線が入射したとき，電子が非弾性散乱される確率は Kröger によって理論的に導かれた [24]．速さ v で入射する電子の波数ベクトルを $\mathbf{K}_0$ とし，運動量 $\hbar\mathbf{k}$ とエネルギー $\hbar\omega$ をもつ励起子を励起して非弾性散乱された後の電子の波数ベクトルを $\mathbf{K}$ とする．運動量保存則とエネルギー保存則は

$$\hbar\mathbf{k} = \hbar\mathbf{K}_0 - \hbar\mathbf{K} \tag{1.42}$$

$$\hbar\omega = \frac{(\hbar\mathbf{K}_0)^2}{2m} - \frac{(\hbar\mathbf{K})^2}{2m} \tag{1.43}$$

と書ける．表面に垂直な電子線入射方向を z 軸，$\mathbf{K}_0$ と $\mathbf{K}$ の作る反射面内で表面に平行な方向を x 軸と取ると，k ベクトルの x, z 成分は近似的に

$$k_x \fallingdotseq K_0\Theta, \quad k_z \fallingdotseq \frac{\omega}{v} \tag{1.44}$$

と表わされる．ここで Θ は電子の散乱角である．

真空の誘電率を $\varepsilon_0 = 1$，薄膜物質の誘電率を ε とすると，入射電子が z 位置において単位長さあたりに失うエネルギーは，電子と薄膜物質が相互作用して作り出す電界 $\mathbf{E}$ を用いて

$$-\frac{dW}{dz} = eE_z = \frac{e}{v}\mathbf{v}\cdot\mathbf{E} \tag{1.45}$$

と表わされる．非相対論的な場合はポアッソン方程式からこの電界を求めることができるが，相対論的な場合には遅延効果を取り入れて Maxwell 方程式を厳密に解いて求めなければならない．単位長さ当たりに $\hbar\omega$ のエネルギーを失い，表面に平行に k_x の運動量変化を受ける確率 $P(k_x, \hbar\omega)$ は

$$-\frac{dW}{dz} = \int 2\pi k_x \cdot dk_x \int d\omega \cdot \hbar\omega P(k_x, \hbar\omega) \tag{1.46}$$

で定義される．この非弾性散乱確率に対して Kröger の導いた結果は次式で与えられる．

$$\begin{aligned}
&P(k_x, \hbar\omega) \\
&= \frac{e^2}{\pi^2\hbar^2 v^2}\mathrm{Im}\left[\frac{1-\varepsilon\beta^2}{\varepsilon\phi^2}d - \frac{2k_x^2(\varepsilon-\varepsilon_0)^2}{\phi_0^4\phi^4}\right. \\
&\times\left\{\frac{\phi_{01}^4}{\varepsilon\varepsilon_0}\left(\frac{\sin^2(\omega d/2v)}{L^+} + \frac{\cos^2(\omega d/2v)}{L^+}\right)\right. \\
&+ \beta^2\frac{\lambda_0}{\varepsilon_0}\frac{\omega}{v}\phi_{01}^2\left(\frac{1}{L_+} - \frac{1}{L_-}\right)\sin(\frac{\omega d}{v}) \\
&- \beta^4\frac{\omega^2}{v^2}\lambda_0\lambda\left(\frac{\cos^2(\omega d/2v)\tanh(\lambda d/2)}{L^+}\right. \\
&\left.\left.\left. + \frac{\sin^2(\omega d/2v)\coth(\lambda d/2)}{L^-}\right\}\right]
\end{aligned} \tag{1.47}$$

ここで，

$$\begin{aligned}
&\lambda_0 = \left(k_x^2 - \varepsilon_0\frac{\omega^2}{c^2}\right)^{1/2}, \lambda = \left(k_x^2 - \varepsilon\frac{\omega^2}{c^2}\right)^{1/2}, \\
&L^+ = \lambda_0\varepsilon + \lambda\varepsilon_0\tanh(\lambda d/2), \\
&L^- = \lambda_0\varepsilon + \lambda\varepsilon_0\coth(\lambda d/2), \\
&\phi^2 = \lambda^2 + \frac{\omega^2}{v^2}, \phi_0^2 = \lambda_0^2 + \frac{\omega}{v}, \\
&\phi_{01}^2 = k_x^2 + \frac{\omega^2}{v^2} - (\varepsilon+\varepsilon_0)\frac{\omega^2}{c^2}, \\
&\beta = v/c
\end{aligned} \tag{1.48}$$

と置いた．(1.47) 式の右辺の括弧内の第一項は，膜厚に比例する体積エネルギー損失を表し，第 2 項以下は表面エネルギー損失を表す．

体積エネルギー損失の項は，遅延ポテンシャルの効果が無視できる非相対論的な場合 $(k_x \gg \omega/c, \sqrt{\varepsilon}\omega/c)$ には $\phi^2 = k_x^2 + k_z^2 = K_0^2(\Theta^2 + \Theta_E^2)$ と近似して次のように書き直される．

$$P(\Theta, \hbar\omega) = d\frac{e^2}{\pi^2\hbar^2 v^2}\mathrm{Im}\left[\frac{1}{\varepsilon}\right]\frac{1}{\Theta^2 + \Theta_E^2} \tag{1.49}$$

ここで，入射電子のエネルギーを E，エネルギー損失を $\Delta E = \hbar\omega$ として，$\Theta_E = k_z/K_0 = \Delta E/2E$ である．この式は，体積プラズモンの励起や固体内電子のバンド間遷移によるエネルギー損失を表している．(1.49) 式において

$$\mathrm{Im}\left[\frac{1}{\varepsilon}\right] = \mathrm{Im}\left[\frac{1}{\varepsilon_r - i\varepsilon_i}\right] = \frac{\varepsilon_i}{\varepsilon_r^2 + \varepsilon_i^2} \tag{1.50}$$

なので，この項は

$$\varepsilon_r(\omega) = 0, \varepsilon_i \ll 1 \tag{1.51}$$

のときに大きなピークを持つことが分かる．

金属中の伝導電子の電子ガスモデルでは，誘電率は

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}\frac{1}{1+i/\omega\tau} \tag{1.52}$$

で与えられる．τ は緩和時間，ω_p は

$$\omega_p^2 = \frac{4\pi n e^2}{m} \tag{1.53}$$

で求められるプラズマ周波数である．誘電率の実数部は

$$\varepsilon_r(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}\frac{1}{1+1/\omega^2\tau^2} \tag{1.54}$$

で与えられるので，$\omega_p^2\tau^2 \gg 1$ なら $\omega = \omega_p$ のとき (1.49) 式はピークをもち，伝導電子の集団的なプラズマ振動を励起したことによるエネルギー損失を与える．体積プラズモンのエネルギー $\hbar\omega_p$ は多くの金属や半導体で 5〜20eV の大きさを持つ．

遅延効果の無視できない相対論的な場合では，$\phi^2 = k_x^2 + k_z^2 - \varepsilon(c^2/\omega^2)$ なので，(1.47) 式の第 1 項は $\phi = 0$ のときピークを持つ．$\phi = 0$ の条件は，誘電率 ε の媒質中での光の分散関係

$$k_x^2 + k_z^2 = \varepsilon\frac{\omega^2}{c^2}\omega = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon}}ck \tag{1.55}$$

を導く．また，このとき，固体内励起による電子の運動量変化を考えると

$$\cos\theta = \frac{k_z}{k_x} = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon}\beta} \tag{1.56}$$

が成り立つ．この関係式はチェレンコフ放射の持つ放射角度依存性に対応しており，[25] チェレンコフ放射を励起することによるエネルギー損失に相当することが分かる．

(1.47) 式の第 2 項以下の表面エネルギー損失に相当する項は $\mathrm{Im}[1/L^+]$ および $\mathrm{Im}[1/L^-]$ を含んでおり，L^+, L^- が極小値をとるとき損失スペクトルにピークを生じる．表面プラズモンのモードには非発光性と発光性のモードがあり，さらに膜厚 d が薄い場合には非発光性のモードは二つの界面のプラズモンモードがカップリングすることにより対称，反対称の二つのモードにわかれる．膜厚が十分薄い場合に，k_x が以下の 2 つの場合に分散関係がどのようになるかを以下に示す．

a) $k_x > \omega/c, \sqrt{\varepsilon}\omega/c$ の場合

この場合には励起される電界の k_z は虚数となり，電界は真空および媒質中で z 方向に減衰してしまい励起波は表面に局在する．これが非発光性の表面プラズモンである.λ_0, λ は実数となり，$L^+ = 0$ と $L^- = 0$ の条件は非対称モード (ω^+ モード) と対称モード (ω^- モード) の分散関係を与える．k_x が大きい領域 ($k_x d \gg 1$) では

$$\mathrm{Im}\left[\frac{1}{L^\pm}\right] = \frac{1}{k_x}\mathrm{Im}\left[\frac{1}{\varepsilon+\varepsilon_0}\right] \tag{1.57}$$

となり，

$$\varepsilon(\omega) = -\varepsilon_0 \tag{1.58}$$

を満たす周波数 ω_s でエネルギー損失はピークを持つ，電子ガスモデルの誘電率を表す (1.52) 式を用いると

$$\omega_s = \frac{\omega_p}{\sqrt{1+\varepsilon_0}} \tag{1.59}$$

となり，薄膜を囲む媒質が真空なら $\varepsilon_0 = 1$ なのでよく知られた $\omega_s = \omega_p/\sqrt{2}$ の関係となる．k_x が十分小さな領域では二つのモード $\omega^+(k_x), \omega^-(k_x)$, は真空中の光の分散関係を示す

$$\omega = ck \tag{1.60}$$

に漸近する．

b) $k_x < \omega/c, \sqrt{\varepsilon}\omega/c$ の場合

k_x が light line より内側にある場合には，励起される電界の k_z は実数となるので，表面プラズモンは真空中の電磁波と結合でき，電磁波を放射して減衰する．これが表面プラズモンの発光性モードで，その分散関係は $L^+ = 0$ の条件から導かれる．この場合，λ_0, λ は虚数となり，それぞれ $\lambda_0 = ik_{z0}$，$\lambda = ik_{z1}$ と置くと $L^+ = 0$ の条件は

$$k_{z0}\varepsilon - ik_{z1}\varepsilon_0 \tan\frac{k_{z1}d}{2} = 0 \tag{1.61}$$

となる．この式は $x-z$ 面内に電界ベクトルを持つ電磁波の p 偏光成分に対する分散関係として，境界面での接続条件からも導かれる [26]．s 偏光成分は，電界が境界面に平行で，表面電荷に影響を与えず平坦な表面の表面プラズモンと結合しないのでここでは考えない．k_x が十分小さいならば (1.61) 式は

$$\sqrt{\varepsilon_0}\tan\sqrt{\varepsilon}\frac{\omega d}{2c} + i\sqrt{\varepsilon} = 0 \tag{1.62}$$

となる．$\varepsilon_i \fallingdotseq 0$ であるような場合には，この条件式は

$$\varepsilon_r = 0 \tag{1.63}$$

となるときに近似的に満足される．これは (1.51) 式と同じ条件であり，体積プラズモンと同じ周波数 ω_p で発光性の表面プラズモンが励起されることを示している．k_x が $k_p(=\omega_p/C)$ 程度またはそれ以上に大きくなると表面プラズモンの分散曲線は light line から外れていく．

求まる電子エネルギー損失は, 電子が表面プラズモンを励起する確率と解釈することができる．図 1.9 に様々な膜厚における銀薄膜のエネルギー損失確率を示す．この図は損失確率を明暗で示し，損失確率が大きい程明るく示している．計算は真空中 ($\varepsilon_0 = 1$) に銀の薄膜が存在するという条件で行った (図 1.9(a))．図 1.9(b) から (d) 中に示す赤い直線は Light line である．計算条件は，加速電圧 200kV の電子が膜厚 10nm(図 1.9(b)), 50nm(図 1.9(c)), 200nm(図 1.9(d)) の銀に入射した場合のエネルギー損失確率について計算を行った．

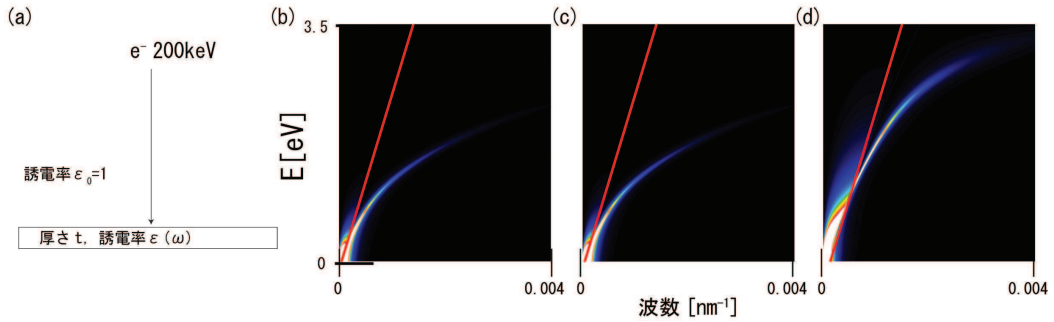

図 1.9: (1.47) 式から求めた電子線損失の膜厚依存性，(a) 計算のモデル, 電子のエネルギーを 200keV として計算している．それぞれの膜厚 t は (b)10nm, (c)50nm, (d)200nm である．

1.4 遷移放射

真空中を等速度運動している荷電粒子が放射しないことはよく知られている. しかし物質内部を荷電粒子がその媒質中の光の位相速度よりも大きい速度で運動していれば等速度運動する粒子でも Cherenkov 放射を生じる [11, 12]. この等速度運動している粒子が引き起こすもう一つのタイプの放射に遷移放射がある. 遷移放射とは等速度運動する荷電粒子が誘電率の異なる二つの媒質の界面を通過するさいに起こる放射現象であり, 放射スペクトルは X 線領域から遠赤外にわたる連続的な形を持つ.1946 年に Ginsuburg と Frank により理論的に遷移放射の存在が示された [13]. この後,Goldsmith と Jelly によって実験的に遷移放射の存在が確認されている [14]. 遷移放射の物理的描像は以下のようなものである. 荷電粒子が第一の媒質内で境界から遠く離れているときは，粒子はその媒質に特有の場を持つ. その後粒子が第二の媒質に深く入り込むと粒子は第二の媒質に特有の場を持つ. このように粒子の運動が一様であっても二つの媒質が異なる電気的な性質を持っていると最初の場と最後の場は異なる. すなわち界面において粒子が通過するときに電場は再構成される. このように界面の存在が電磁場の急激な変化を引き起こし. それに伴う場の揺らぎが電磁場となって遠方に伝わる. 今述べたことから遷移放射は荷電粒子の加速度運動から生じる制動放射とは本質的に異なる放射である. つまり制動放射は荷電粒子による放射であるのに対して, 遷移放射は異なる電気的性質を持つ媒質の界面が引き起こす放射であり, 本質的に界面の効果である.

1.4.1 等速荷電粒子による電磁場

まず初めに, 等速運動している荷電粒子によって張られる場について一般的に記述する. 今誘電率を ε, 非磁性 ($\mu = 1$) の媒質中を電荷 q の荷電粒子が速度 v で z 軸上を z>0 の方向に等速運動しているとする. このとき電流密度の ω フーリエ成分は,

$$\mathbf{j}_\omega(\mathbf{r}) = \frac{q\mathbf{v}}{|\mathbf{v}|\omega}\delta(x)\delta(y)\exp\left(\frac{i\omega z}{v}\right) \tag{1.64}$$

である. この荷電粒子によって生成される場は Hertz ベクトル $\Pi(\mathbf{r},t)$ より求められる.Hertz ベクトル $\Pi(\mathbf{r},t)$ と電場 $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$, 磁場 $\mathbf{B}(\mathbf{r},t)$ は次式で関係づけられている.

$$\mathbf{E} = -(\mathbf{k}\cdot\Pi)\mathbf{k} + k^2\Pi, \mathbf{B} = \frac{\varepsilon\mu\omega}{c}\mathbf{k}\times\Pi \tag{1.65}$$

Hertz ベクトル の ω フーリエ成分が満たす方程式は

$$(\nabla^2 + k^2)\Pi_\omega(\mathbf{r}) = -i\frac{4\pi}{\varepsilon\omega}\mathbf{j}_\omega(\mathbf{r}) \tag{1.66}$$

であり,$k^2 = (\omega/c)^2\varepsilon$ である. この方程式の解は Green 関数 $G_\omega(\mathbf{r})$ を用いて次のように表される.

$$\Pi_\omega(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r'} G_\omega(|\mathbf{r}-\mathbf{r'})\frac{4\pi}{i\omega\varepsilon}\mathbf{j}_\omega(\mathbf{r'}) \tag{1.67}$$

今の場合 Green 関数 $G_\omega(\mathbf{r})$ は次式で与えられる.

$$G_\omega(|\mathbf{r}\text{-}\mathbf{r'}|) = \frac{\exp(ik|\mathbf{r}\text{-}\mathbf{r'}|)}{4\pi|\mathbf{r}\text{-}\mathbf{r'}|} \tag{1.68}$$

また, 十分遠方での放射場では次の近似が成り立つ.

$$|\mathbf{r}\text{-}\mathbf{r'}| \cong r - \frac{\mathbf{r}}{r}\cdot\mathbf{r'} \tag{1.69}$$

よって Hertz ベクトルは十分遠方では

$$\Pi_\omega \cong \frac{1}{i\omega\varepsilon}\frac{\exp(ikr)}{r}\int d\mathbf{r'}\exp(-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r'})\mathbf{j}_\omega(\mathbf{r'}) \tag{1.70}$$

となり, この式に (1.70) を代入すると

$$\Pi_\omega \cong \frac{q\mathbf{v}}{i\omega\varepsilon|\mathbf{v}|}\frac{\exp(ikr)}{r}\int_{-\infty}^{\infty} dz'\exp\left\{i\left(\frac{\omega}{v}-k_z\right)z'\right\} \tag{1.71}$$

となる. 一方, 放射の全平均エネルギー $\bar{I}$ は

$$\bar{I} = 2\int r^2 d\Omega\int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi}|\bar{\mathbf{S}_\omega}| \tag{1.72}$$

で表される. ここで $\bar{\mathbf{S}}_\omega$ は Poynting ベクトルの ω フーリエ成分の時間平均である.$\bar{\mathbf{S}}_\omega$ と Hertz ベクトル とは次の関係式で結ばれている.

$$\bar{\mathbf{S}}_\omega = \frac{\omega^2 q^2}{8\pi c^3}\mathbf{n}\Re(n)|\mathbf{n}\times\Pi_\omega|^2 \tag{1.73}$$

この式に (1.71) を代入すると

$$\bar{\mathbf{S}_\omega} = \frac{\omega^2 q^2}{8\pi c^3}Re(n)\sin^2\theta\frac{\exp\{-2\mathrm{Im}(k)r\}}{r^2}|A|^2 \tag{1.74}$$

$$A = \lim_{d\to\infty}\int_{-\frac{d}{2}}^{\frac{d}{2}} dz'\exp\left\{i\left(\frac{\omega}{v}-k_z\right)z'\right\} \tag{1.75}$$

となる．よって放射の全平均エネルギー $\bar{\mathbf{I}}$ は

$$\bar{\mathbf{I}} = \int d\Omega \int_0^\infty d\omega \frac{\omega^2 q^2}{4\pi^2 c^3} Re(n) \exp\{-2\mathrm{Im}(k)r\} \sin^2\theta |A|^2 \tag{1.76}$$

となり, よって単位周波数および単位立体角当りへの放射強度は次式で与えられる.

$$\frac{d^2\bar{\mathbf{I}}}{d\Omega d\omega} = \frac{\omega^2 q^2}{4\pi^2 c^3} Re(n) \exp\{-2\mathrm{Im}(k)r\} \sin^2\theta |A|^2 \tag{1.77}$$

以上で等速運動する荷電粒子によって生成される電磁場と単位周波数および単位立体角当りへの放射強度について求めた.

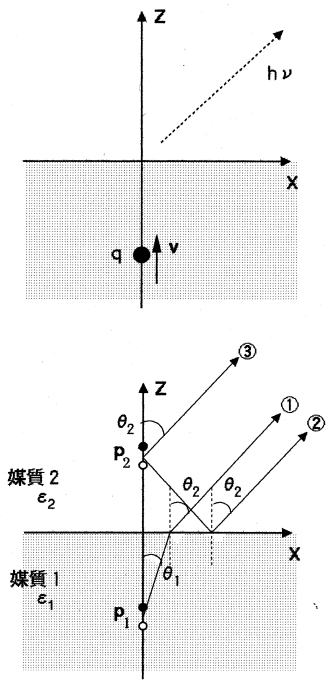

図 1.10: 単一界面からの遷移放射
(a) 電荷 q が速度 v で媒質 1 と媒質 2 の境界面に垂直入射する.
(b) 電荷の場をその軌道に沿って並んだ電気双極子の場の重ね合わせと考えたときの各媒質の双極子からの前方放射への寄与
　P_1 の場が境界面で屈折した場　P_2 の場が境界面で反射した場　P_2 による直接の場

1.4.2　単一界面からの遷移放射

次に上で得た結果を元に遷移放射の放射スペクトルを Pafomov による以下の二つの取り扱いに従って導出する [15].

- 運動している荷電粒子の場の ω フーリエ成分は, 単位長さ辺り $ie/2\omega\exp(i\omega z/v)$ のモーメントを持った電気双極子による場の入射荷電粒子の軌跡に沿って重ね合わせである
- 電気双極子の境界面上における場を求めるさいに伴う困難さを避けるため相反定理を用いる

このとき図 1.10 のようにそれぞれの領域からの放射の寄与を考えなくてはならない.

(1) 領域 1 の双極子の場が界面で屈折した場

(2) 領域 2 の双極子の場が界面で反射した場

(3) 領域 2 の双極子自身からの場

よって単一界面に対する遷移放射の Hertz ベクトルは次のように書き換えられる

$$\begin{aligned}
\Pi_\omega &= \frac{q\mathbf{v}}{i\omega\varepsilon_2|\mathbf{v}|}\frac{\exp(ik_2r)}{r}(S_1+S_2+S_3)\\
S_1 &= \int_0^{-\infty} dz'\frac{n_2}{n_1}f_{21}\exp\left\{i\frac{\omega}{v}z'(1-\beta n_1\cos\theta_1)\right\}\\
S_2 &= \int_0^{\infty} dz' r_{21}\exp\left\{i\frac{\omega}{v}z'(1+\beta n_2\cos\theta_2)\right\}\\
S_3 &= \int_0^{\infty} dz'\exp\left\{i\frac{\omega}{v}z'(1-\beta n_2\cos\theta_2)\right\}
\end{aligned} \tag{1.78}$$

S_1, S_2, S_3 はそれぞれ 1,2,3 からの寄与を表す. また f_{21}, r_{21} はそれぞれ媒質 2 から 1 へ P 偏光の光が入射するときの電場の振幅透過係数と反射係数である.

$$f_{ij} = \frac{2n_j\cos\theta_i}{n_j\cos\theta_i+n_i\cos\theta_j}r_{ij} = \frac{n_j\cos\theta_i-n_i\cos\theta_j}{n_j\cos\theta_i+n_i\cos\theta_j} \tag{1.79}$$

よって単一界面に対する遷移放射の単位周波数および単位立体角当りへの放射強度は

$$\begin{aligned}
&\frac{d^2\bar{\mathbf{I}}}{d\Omega d\omega} = \frac{\omega^2q^2}{4\pi^2c^3}|F(\theta_2,\theta_1,n_2,n_1,\beta)|^2 Re(n_2)\exp\{-2\mathrm{Im}(k_2)r\}\sin^2\theta_2\\
&F(\theta_2,\theta_1,n_2,n_1,\beta) = S_1+S_2+S_3\\
&= \frac{n_2}{n_1}\frac{f_{21}}{1-\beta n_1\cos\theta_1} - \frac{r_{21}}{1+\beta n_2\cos\theta_2} - \frac{1}{1-\beta n_2\cos\theta_2}
\end{aligned} \tag{1.80}$$

となる.

ここで得たのは媒質 2 への前方放射の放射強度である. 後方放射を求めるためには F の中の β を $-\beta$ に置き換えればよい. したがって媒質 1 への後方放射強度は次式で表される.

$$B(\theta_2,\theta_1,n_2,n_1,\beta) = F(\theta_2,\theta_1,n_2,n_1,-\beta) \tag{1.81}$$

ここで非相対論的な場合を考える. このとき $\beta n_i \ll 1$ が成り立つので F は次のように書ける.

$$\begin{aligned}
&F(\theta_2,\theta_1,n_2,n_1,\beta) \cong F'(\theta_2,\theta_1,n_2,n_1,\beta) = \frac{n_2}{n_1}f_{21} - r_{21} - 1\\
&= 2\cos\theta_2\frac{n_2^2-n_1^2}{n_1}\frac{1}{n_1\cos\theta_2+n_2\cos\theta_1}
\end{aligned} \tag{1.82}$$

よって非相対論的な遷移放射強度は

$$\frac{d^2\bar{\mathbf{I}}}{d\Omega d\omega} = \frac{q^2v^2}{\pi^2c^3}Re(n_2)\exp\{-2\mathrm{Im}(k_2)r\}\sin^2\theta_2\cos^2\theta_2\left|\frac{1}{n_1\cos\theta_2+n_2\cos\theta_1}\right|^2\frac{|\varepsilon_2-\varepsilon_1|^2}{|\varepsilon_1|} \tag{1.83}$$

となり角度依存を無視すると放射強度は

$$\frac{|\varepsilon_2-\varepsilon_1|^2}{|\varepsilon_1|} \tag{1.84}$$

に比例する. ここで誘電率の差が放射強度に現れ, もし二つの誘電率が等しければ放射強度はゼロになることが分かる. また，角度依存については，$\sin^2\theta\cos^2\theta$ の項があるので，θ=0° と θ=90° 方向への強度は 0 となることが分かる．(1.83) 式を用いて，真空から銀に入射したときの遷移放射強度を求めたのが図 1.11 である．図 1.11(a) に θ=0° から θ=45° まで, 図 1.11(b) に θ=45° から θ=90° までの各放射角度による遷移放射のスペクトルを示す．放射強度は θ=45° に近いほど強くなっており，ピークエネルギーは放射角度によって変化している．図 1.11(a) は 1.2eV から 3.5eV までのエネルギーに対する遷移放射強度の放射角度依存性を示したものである．エネルギーによってピークとなる放射角度が変化しているのが分かる．これらは $n_1\cos\theta_2+n_2\cos\theta_1$ の項に依存した効果である．

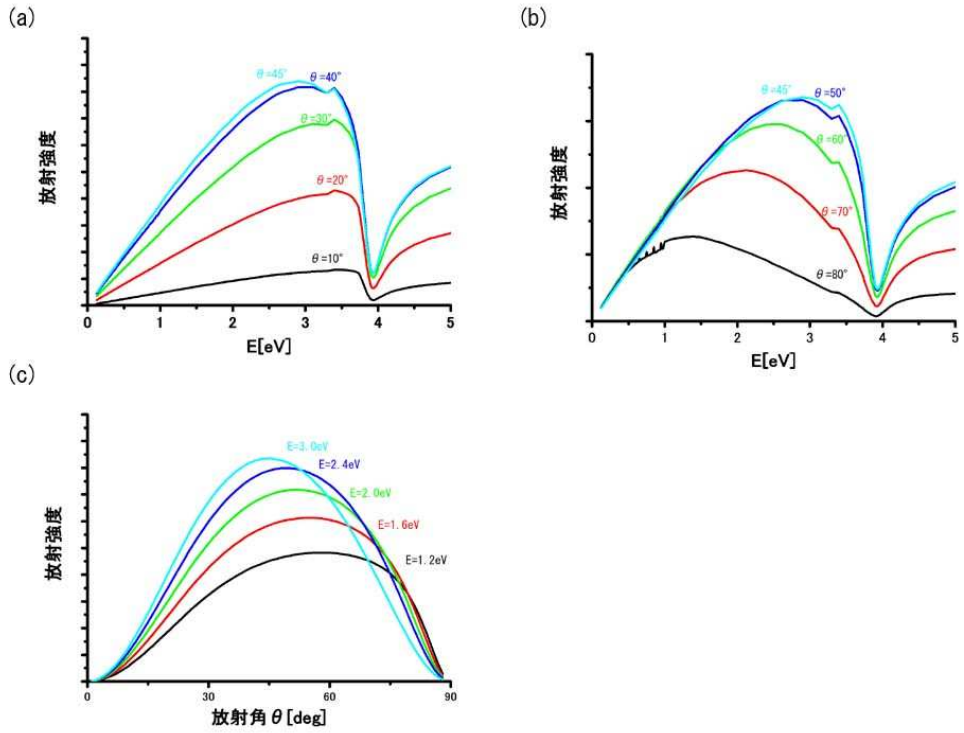

図 1.11: (1.83) 式を用いて計算した平坦な Ag 表面における遷移放射強度 (a),(b) 放射角度による遷移放射のスペクトル変化．(a)θ=0° から θ=45°, (b)θ=45° から θ=90° を示した．(c) 各エネルギーにおける放射強度の放射角依存性,

1.5 従来の研究

本節では，表面プラズモンポラリトン (SPP) に対する従来の研究のうち代表的なものを紹介する．

電子線による SPP 分散曲線の観察 Heitmann は，図 1.16 に示すような実験配置で，フォトレジスト膜で作製したグレーティングの上に Ag を蒸着した試料に電子を入射した時に放射する光を，電子の入射方向 α と光の検出方向 θ を変えて測定した．図 1.13 に示すのはグレーティングの周期 $\Lambda = 8850$, 高さ $H = 500$ の試料に加速電圧 80keV の電子線を $\alpha = 70°$ で入射した時の，各エネルギーにおける放射強度の放射角度依存性を示したものである．各エネルギーで複数のピークが現れており，現れたピークエネルギーと放射角度の関係から，面内の波数とエネルギーの関係に変換したのが図 1.17 である．この図は，得られた放射スペクトルのピークが，SPP が周期的な金属表面の逆格子ベクトル $2\pi/\Lambda$ によって散乱された結果放射された光であることを示している．[17]

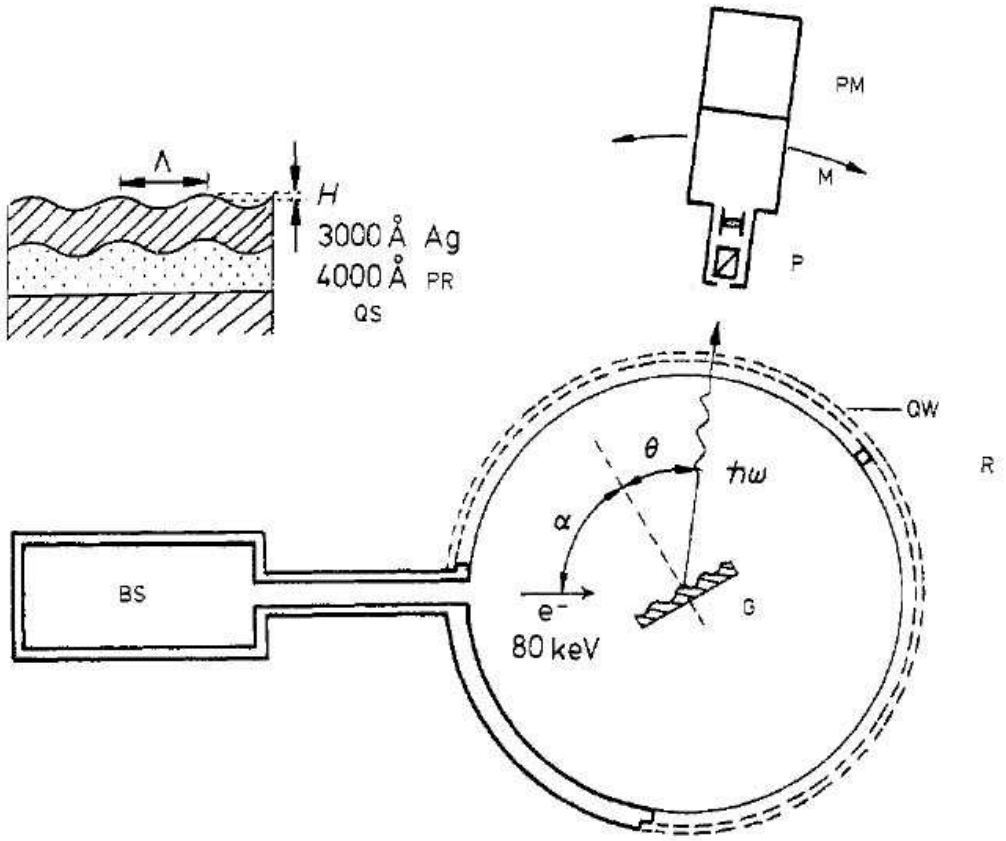

図 1.12: Hiteman らによる実験条件．電子の入射方向と放射光の検出方向を独立して制御できるようになっている．

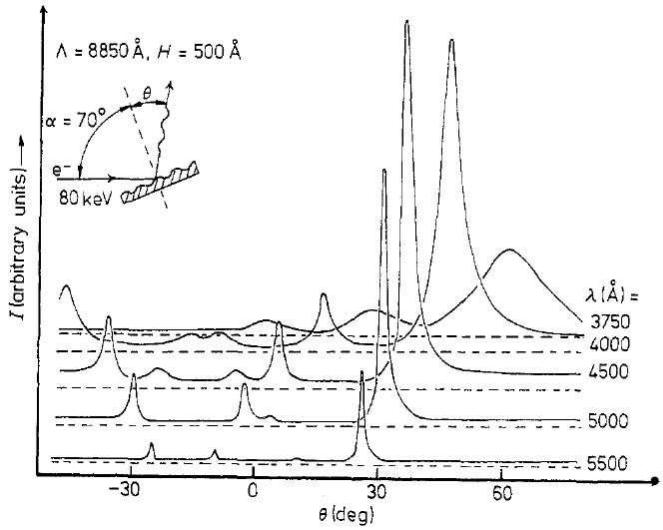

図 1.13: 加速電圧 80keV の電子線を α=70° で試料に入射した時に得られた．各エネルギーの放射光の放射角度依存性

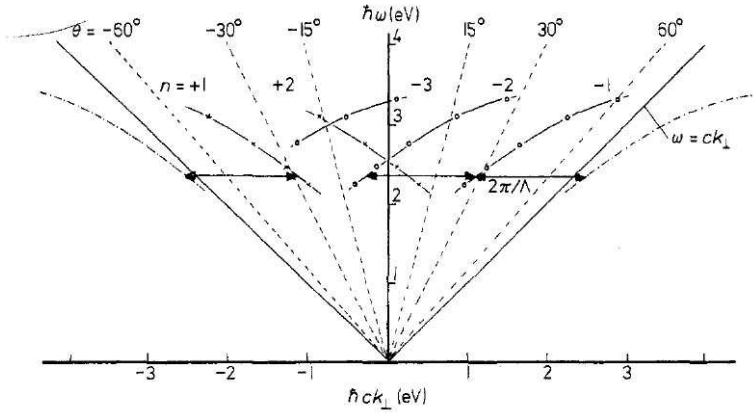

図 1.14: 図 1.13 で得られたピークエネルギーから導出した分散関係．得られたピークは SPP が周期表面によって散乱された結果現れたものである事が分かった．

ATR 法による SPP 分散の観察　Heitmann が，電子線を用いて SPP の分散曲線の測定を行う前に，Otto [2] や Kretschmann ら [3] によって金属薄膜に光を入射することで SPP の分散曲線の測定を行った．ここでは Otto の結果について紹介する．SPP の分散曲線は図 1.3 に示したように，ライトラインの外側に存在する．光と SPP の結合条件は

$$\begin{aligned} E_{ph} &= E_{SPP} \\ k_{ph}\sin\theta &= k_{SPP} \end{aligned} \tag{1.85}$$

であるので，図 1.15(a) の条件では，SPP は光で励起することはできない．そこで Otto は，図 1.15(b) のように，媒質 S よりも屈折率 n が大きな媒質 P をを少しだけ離して配置することで，金属表面の SPP を励起すると考えた．これを分散曲線で示したのが図 1.15(c) である．媒質 S におけるライトラインが I，SPP の分散が A であり，媒質 P におけるライトラインが II，SPP の分散が B である．ライトライン I と SPP 分散 A では結合条件を満たすことはできないが，ライトライン II と SPP 分散 B の間では,E の場合に結合条件を満たす．Otto は，図**??**に示す実験配置で Ag からの全反射スペクトルの測定を行った．入射光が SPP を励起したならば，そのエネルギーの反射率は落ちるはずである．得られた全反射スペクトルから求めた SPP の分散線が図**??**である．

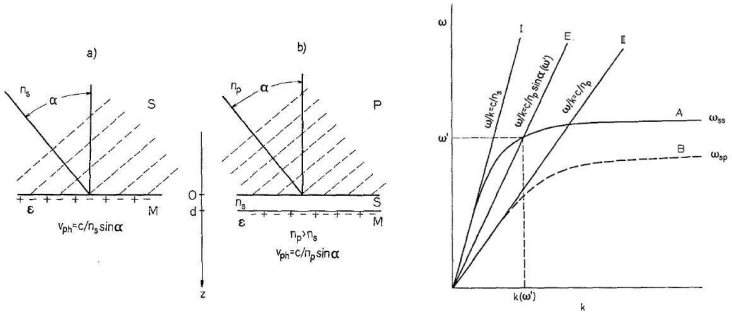

図 1.15: SPP と光の結合条件．(a) 媒質 S と金属の界面で励起する SPP((c) の A) はライトライン ((c) の I) の外側なので光は SPP を励起できない．(b) の場合，媒質 P のライトライン ((c) の II) の内側に媒質 S と金属の界面で励起する SPP は存在するので光と SPP は結合できる

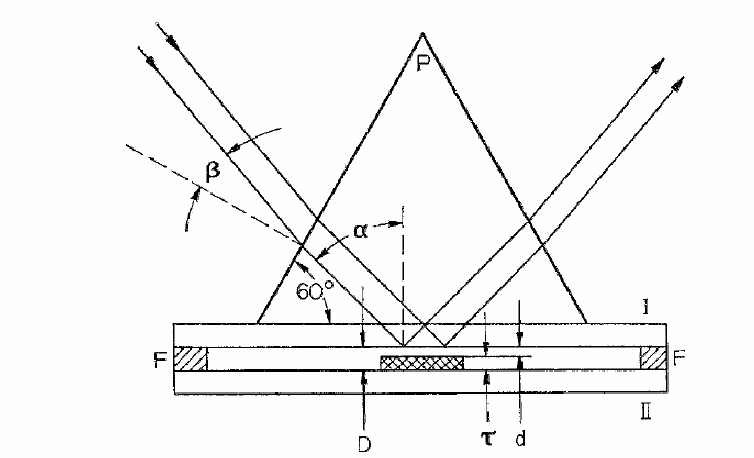

図 1.16: Otto らの実験配置．プリズムにおいて全反射した光の反射スペクトルの測定した

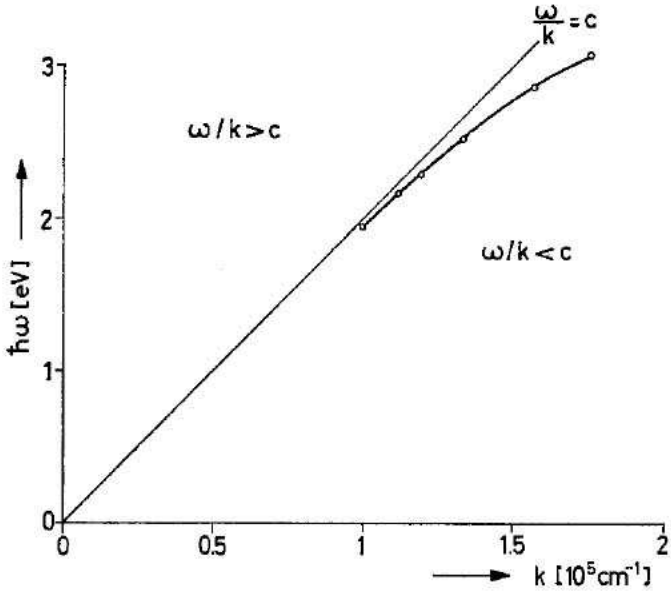

図 1.17: Otto らの実験により得られた Ag 表面の SPP 分散曲線

光による SPP の実空間観察　これまでに紹介した二つの実験結果は，SPP の分散の測定を行うものであった．ここでは，J. C. Weeber らによる光走査型トンネル電子顕微鏡 (P-STM) による SPP の電場分布観察の例を紹介する [9,18]．図 1.18 に実験装置の概略図を示す．P-STM は，STM 探針として光ファイバーに金属をコーティングしたものを用いている．探針のフィードバックは通常の STM と同様にトンネル電流を用いる．またこの装置では，Kretschmann 配置 [3] で SPP を励起する．励起した SPP は近接場であるので，放射することはないが，探針を近付け SPP の電場を散乱させることで光を取りだすという手法である．この手法では伝播する SPP の観察は難しく，図 1.19 にあるような導波路中を伝播する SPP が反射して作る定在波の観察が行われている．

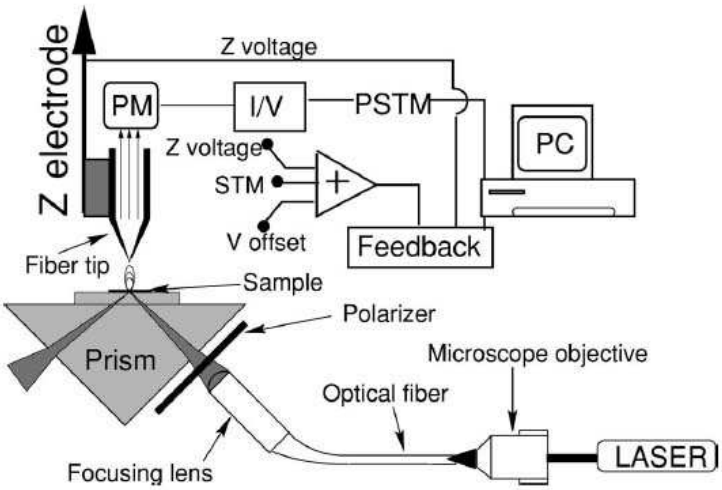

図 1.18: P-STM の装置概略図．Kretschmann 配置で励起した SPP の電場を光ファイバーで作った探針で散乱させることで，放射光を測定する

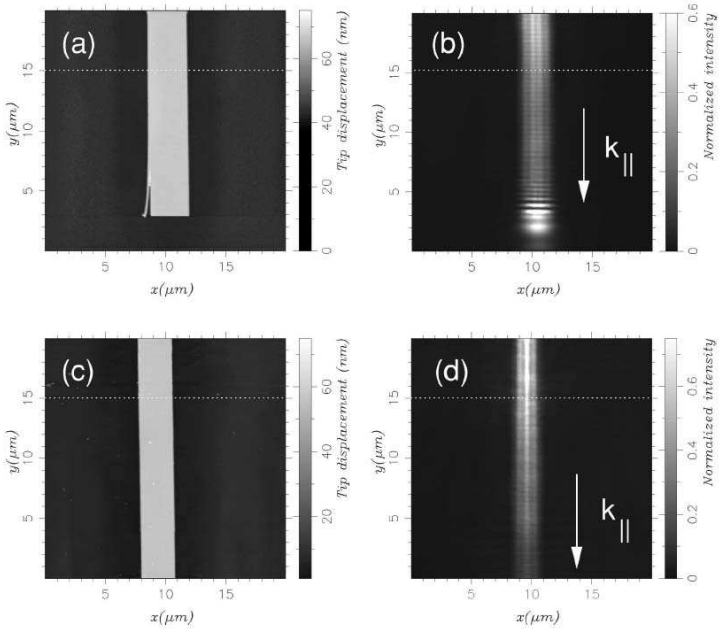

図 1.19: P-STM による観察結果．(a)SPP 導波路の端面の STM 像と (b) フォトンマップ．端面で反射された SPP が作る定在波の電場分布が観察されている．また端面では SPP が光に変換される為その発光強度が強くなっている．(c) 導波路の STM 像．(d)x 方向に閉じ込めがおきる為，その強度分布は中心が強くなっている．

SPP-光変換　ここでは，金属表面のナノ構造によって SPP が散乱されたときにどのような放射強度分布を取るかについての理論研究について，J. A. Sánchez-Gil ら [19] の報告を紹介する．彼らは，図 1.20 に示すような金属表面の散乱体による．SPP の反射率，透過率，散乱確率の計算を行った．得られた結果が図 1.21 である．横軸は SPP の波長に対する散乱体の半値幅である．散乱体が大きくなると，SPP はほとんど反射をせずに，透過や散乱されるという計算結果が得られている．また $E = 1.96eV$ のエネルギーにおいて，銀表面の $a = 0.1\lambda$, 高さ $h = 0.05\lambda$ の散乱体によって散乱された SPP の電場分布を示したの図 1.22 である．計算結果を見ると，垂直から傾いた角度に放射されているのが分かる．

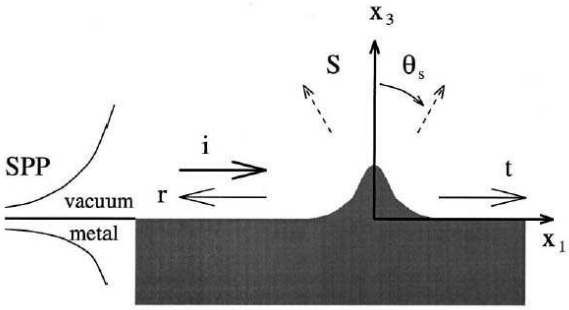

図 1.20: 計算に用いた散乱体のモデル図．ガウス関数の形をした突起を考えている

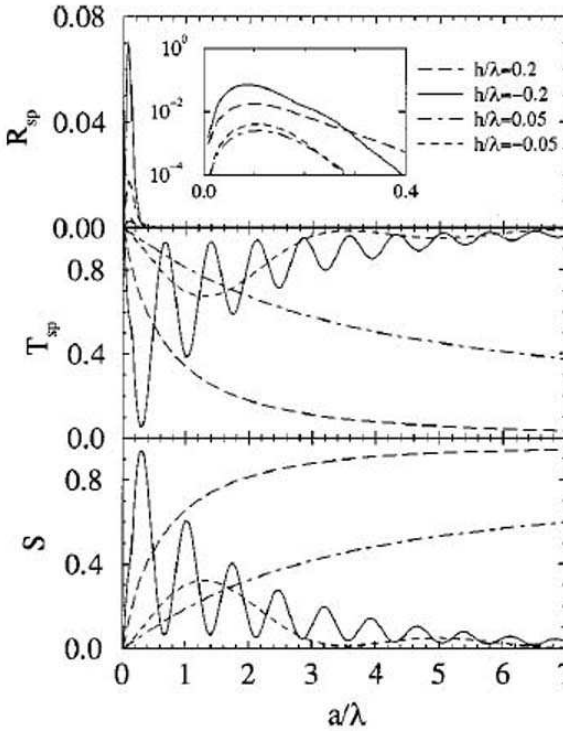

図 1.21: 計算で得られた，SPP の反射率 R，透過率 T，散乱確率 S．横軸は SPP の波長に対する散乱体の半値幅である

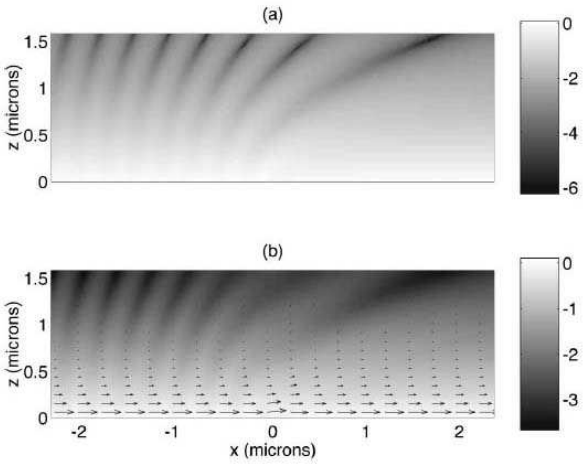

図 1.22: 散乱された SPP の電場分布．散乱体の大きさはは $a = 0.1\lambda$, 高さ $h = 0.05\lambda$ である．

SEM-CL 法によるプラズモニック結晶の観察　Bashevoy らによって光検出装置を組み込んだ走査型電子顕微鏡 (SEM-CL) で，プラズモニック結晶中の SPP が観察された [20]. 彼らは図 1.27 に示す 2 種類のミラーを使い分ける事により，金表面に作製した矩形の 1 次元プラズモニック結晶中の特定の分散に対応する SPP からの発光を測定した．測定にはマルチチャンネルの CCD を用いて，電子線プローブの入射位置ごとの発光スペクトルを測定し，hyperspectral imaging(HSI) と呼ぶマッピングを行った．図 1.24 が Wide-angle のミラー (-70° <θ< 30°), で測定した結果であり．図 1.24 中に示す高分解能測定では，テラス幅に対応するコントラストが現れている．また，図 1.25 が narrow-angle(-82° <θ< -67°) で測定した結果である．二つの結果を見ると発光強度が強いエネルギーが異なっており，これは SPP の分散曲線があるエネルギー範囲が異なるためである．しかしながらこの測定は非常に荒く，プラズモニック結晶のバンド構造等の観察はできていない．

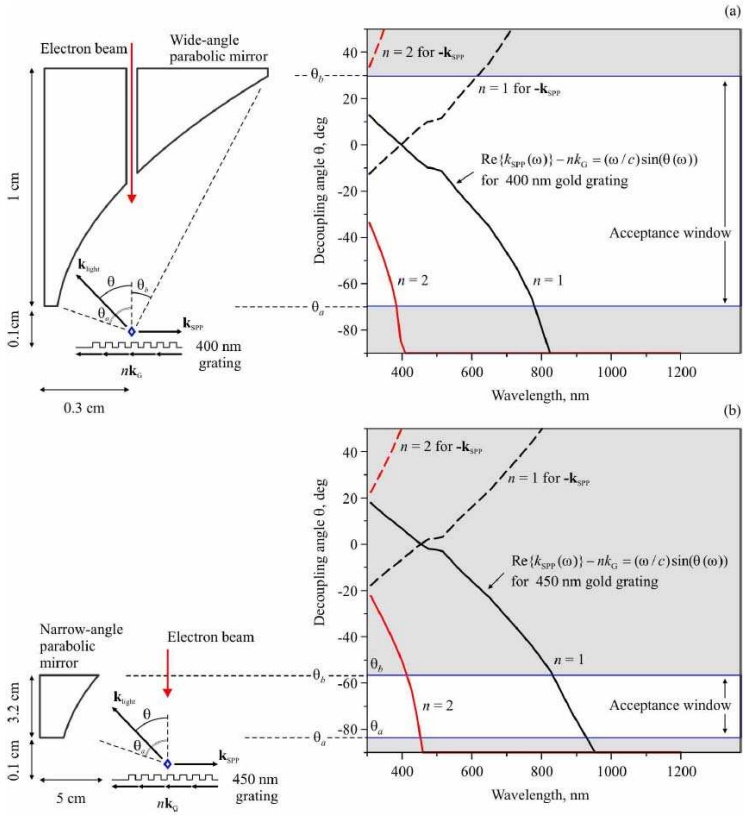

図 1.23: 測定に使った 2 種類の放物面ミラーの概略図．検出できる放射角範囲が異なる．

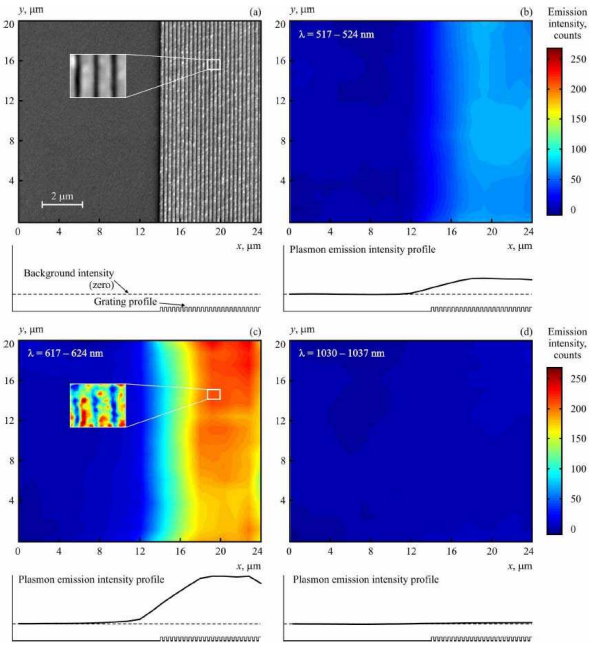

図 1.24: Wide-angle のミラーで測定した HSI の一部．光の波長が 617nm-624nm の間が強度が強く．これは図 1.27(a) の分散線の $n = 1$ に対応する

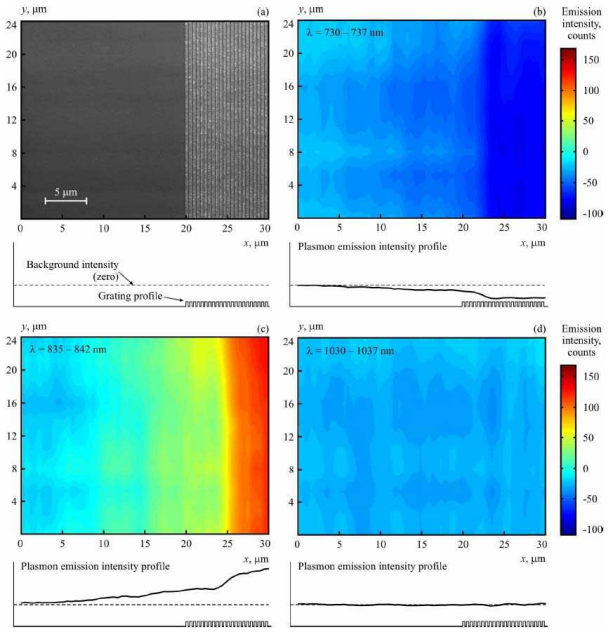

図 1.25: Narrow-angle のミラーで測定した HSI の一部．光の波長が 835nm-842nm の間が強度が強く．これは図 1.27(b) の分散線の $n = 1$ に対応する

プラズモニック結晶中の Cavity　二つのプラズモニック結晶に挟まれた空間に励起する SPP の Cavity モードに対する J.C.Weeber らによる理論的，実験的な報告を紹介する [21]．図 1.26 に示すように，二つのプラズモニック結晶 M1,M2 の距離 δ を変え，一方向から SPP が伝播した場合の電場分布の計算を $S-Matrix$ [22] を用いて計算した．その結果を図**??**に示す．(b) から (d) は $\lambda = 805nm$ の SPP による空間分布である．$\delta = 150nm$ では Cavity 内に強い強度分布が現れたが，$\delta = 350nm$ では，そのような強度分布は観察されなかった．(e) は

$$\eta = \frac{\int_\Omega E^2_{Cavity}(x)dx}{\int_\Omega E^2_{mirror}(x)dx} \tag{1.86}$$

で定義した増強度を各波長で求めたものである．Cavity 幅によりピークエネルギーが変化しているのが分かる．この変化の仕方より，プラズモニック結晶中のバンド端の定在波モードとの連続性から SPP の反射の位相シフトがエネルギーによって変化すると考えた．また，図 1.26 のような試料を金表面に作製し，図**??**で示した P-STM で Cavity モードの観察を行った．図 1.28 が試料の SEM 像と PSTM 像である．SPP は矢印で示した方向から伝播しており，(a) が Caivty の無い場合の結果であり，(b) に示す Cavity がある場合と比較すると Cavity モードが現れているのが分かる．また図 1.29 のように，Cavity 幅を広げると，現れる Cavity モードのフリンジの数が変化していることを確認した．

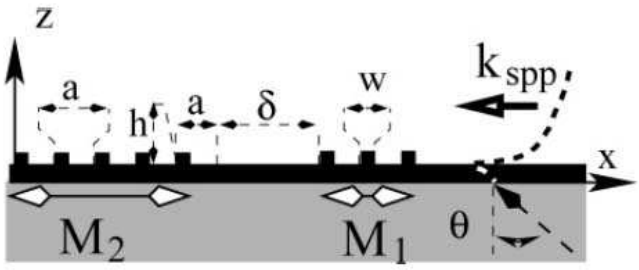

図 1.26: 計算に用いた試料形状．M1，M2 のプラズモニック結晶の距離を変えて，M1 側から伝播する SPP の空間分布を計算した．

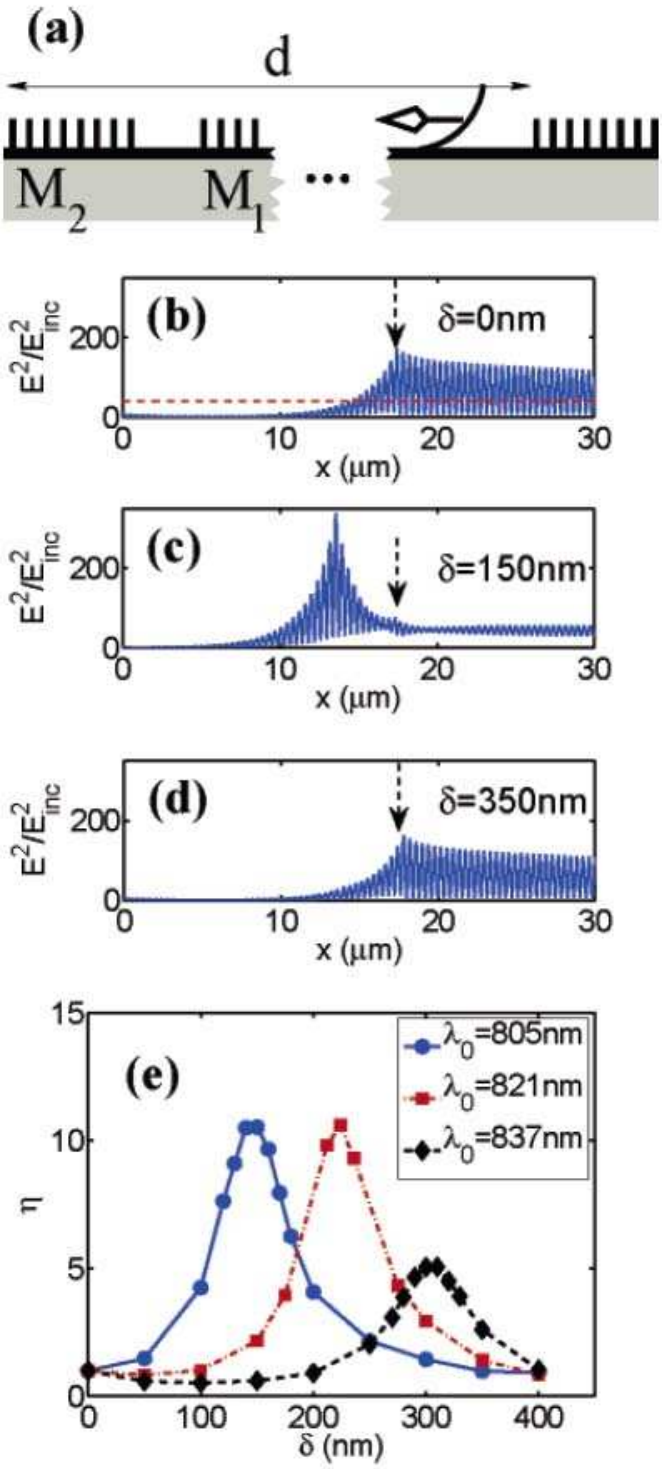

図 1.27: 計算された SPP の電場分布．(a) 試料モデル．805nm の波長の SPP で計算した (b)$\delta = 0$,(c)$\delta = 150nm$，(d)$\delta = 350nm$ の電場分布．δ によって強度が変化している．(e)δ を変えた時の各波長での増強度 η の変化．ピークとなるエネルギーが変化している．

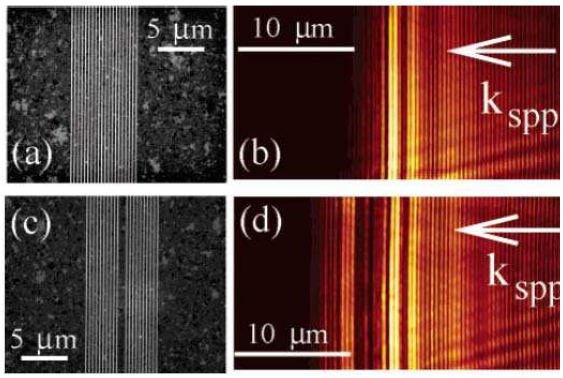

図 1.28: 試料の SEM 像と PSTM 像．測定は SPP バンドギャップ内のエネルギー ($\lambda = 805nm$) で行った．(a)Cavity のない試料の SEM 像と (b) その試料の PSTM 像．プラズモニック結晶内では急速に SPP が減衰している．(c)δ=550nm の Cavity の SEM 像と (d)PSTM 像．Cavity 位置に対応する場所で発光が起こっているのが観察される．

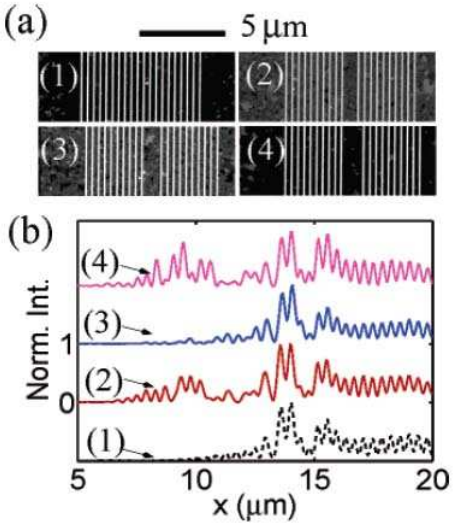

図 1.29: Cavity 幅 δ を変えた試料からの PSTM 像のラインプロファイル．Cavity 幅によってモードが変化している

1.6 本研究の目的

高い空間分解能で表面ナノ構造による SPP-光変換効率を調べる手法を確立することは，プラズモニクスの分野の進展に対して非常に重要である．そこで本研究では，発光スペクトルの放射角度分解測定が可能な TEM に組み込んだ光検出装置を用いて，いくつかの表面ナノ構造における SPP-光変換の機構を明らかにし，電子線励起発光顕微法が SPP-光変換について研究する有用な手法であることを示すことを目的とする．

第 2 章では，表面ナノ構造からの発光を放射角度分解測定可能な TEM に組み込んだ光検出装置について説明した後，本研究で用いた実験手法について説明する．第 3 章では，ステップ端における電子を入射したときの放射スペクトルを測定することで，ステップ端における SPP-光変換機構のモデルと変換効率について明らかにした．第 4 章では，周期配列した矩形テラス構造 (1 次元プラズモニック結晶) に電子を入射したときの放射スペクトルを測定することで，1 次元プラズモニック結晶からの SPP-光変換機構とプラズモニックバンドギャップの周期構造依存性について明らかにした．第 5 章では 1 次元プラズモニック結晶内に存在する Cavity にから放射スペクトルを測定することで，バンドギャップ内のエネルギーを持つ SPP の反射の位相について明らかにした．

第2章　実験装置・手法

2.1　光検出装置組み込み型透過電子顕微鏡

本研究では放射光検出装置を組み込んだ透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた. 装置の外観を図 2.1 に，模式図を図 2.2 に示す. 本節では，実験に使用した透過電子顕微鏡と放射光検出装置の性能について説明する.

図 2.1: 実験外観

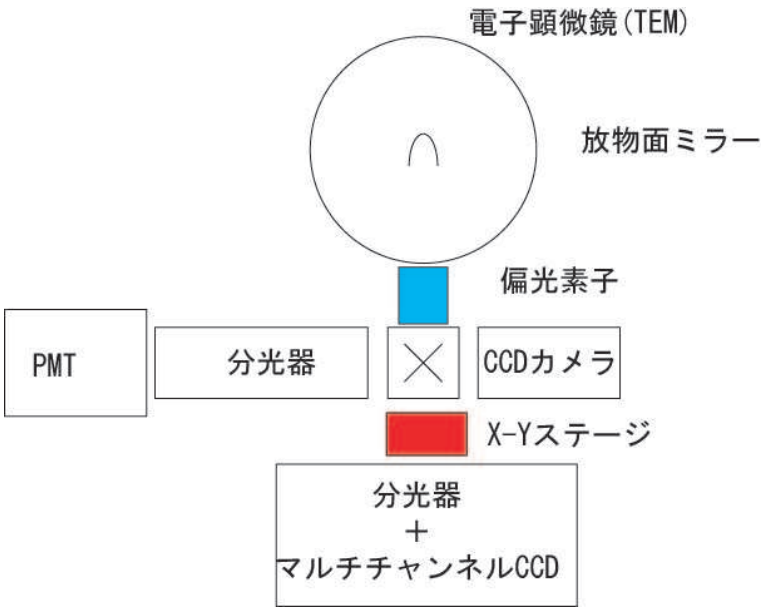

図 2.2: 実験装置の模式図

2.1.1 透過型電子顕微鏡

本研究で用いた透過型電子顕微鏡は日本電子製の JEM-2000FX である．この装置は対物レンズの前方磁場で電子線を収束させ偏向コイルによって電子線を走査することができる．この走査機能によって走査電子顕微鏡 (SEM) 像の観察が可能となっている．後述する本研究で用いた試料は電子線の透過像を観察できないため実験は SEM モードで行った．図 2.3 に JEM-2000FX の光学系を示す．(a) が透過電子顕微鏡像，透過電子回折パターンに対応し，(b) が走査像観察に対応している．電子線源としては LaB_6 単結晶フィラメントを用いてる．これはタングステンフィラメントに比べ 5〜10 倍の輝度を得ることが可能であり, 電子線の収束半径を 100nm 以下にすることが可能である．

試料を TEM 内に導入するときには，図 2.4 に示すように板バネを組み込み試料に取り付けた銅メッシュを板バネに挟むことで試料を固定している．この板バネを使うことにより試料上面が TEM ホルダー上面よりも上にくるので，ミラーが試料ホルダーにぶつかることなく光学調整を行うことが出来る．また使用した TEM 試料ホルダーは日本電子製の 2 軸ホルダーである．そのため試料表面を電子線入射方向に対して垂直にすることが可能である．

以下に JEM-2000FX の性能をまとめる．

	JEM-2000FX
走査像観察装置	日本電子製 EM-ASID20
加速電圧	200kV
ビーム半径	100nm 以下

表 2.1: JEM-2000FX の性能

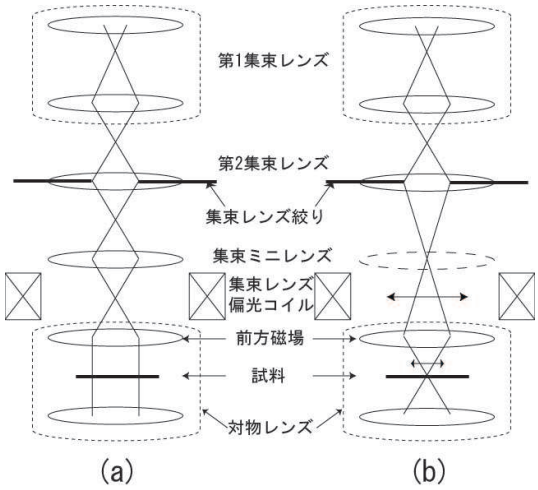

図 2.3: 実験装置の模式図

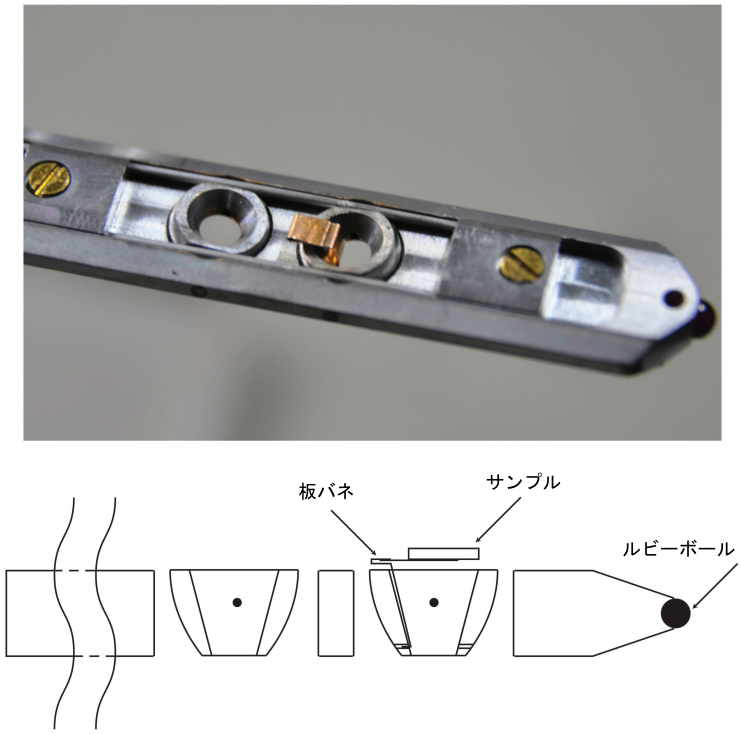

図 2.4: (a)TEM ホルダーの光学写真,(b)TEM ホルダーの模式図．試料は板バネに挟むことでホルダーに固定する

2.1.2 光検出装置

放射光の検出は, 図 2.2 に示す 3 方向切り替え装置によって 3 つの光学検出装置を利用することができるようになっている. 放射像検出装置は, 集光部 (放物面ミラー), 偏向素子を共通とし,3 方向切り替え装置によってその後の光路を 3 つに切り替えることができ, そこに記録・表示・処理系 (パーソナルコンピューター) が接続されているという形式になっている.

以下，装置性能と光学系に分けて詳細を述べる

2.1.2.1 装置性能

本研究で用いた放物面ミラーの光学写真と概略図を図 2.6 に示す．素材はアルミニウムであり，角材に放物面の穴を開け二つに切断したものである．ミラーの加工はトプコン社に依頼した．大きさは幅 11mm，高さ 5mm，奥行き 5mm であり, 放物面の焦点距離 p=2mm となっている．試料表面に焦点位置を合わせるために焦点位置はミラー最下面から 0.2mm 下になっている．焦点位置上部に電子線を通す為に ϕ=0.6mm の穴があいている．図 2.5 は放物面ミラーの支持, 制御に用いられるミラーステージの模式図である. 粗動ネジによってミラーは鏡筒内に導入され, 三つのマイクロメーターによってミラーの焦点を合わせることができる. また放物面型ミラーによって集光された光は, その後分光器へ入る前に偏向素子を通過するが, この偏向素子によって分光器の回折格子による Wood anomaly の放射スペクトルへの影響を防ぐことができる.Wood anomaly は, 分光器のスリットに対して垂直に偏光した光に対して著しく生じる. 今回の実験では S 偏光がそれにあたり S 偏光では波長 370nm 付近と 500nm 付近にスペクトル強度の減少が見られる. 偏光素子を通過した後 3 つの光路を切り替えることができる．以下に本研究で用いた光学系の性能について Table.2.2 に，各光学素子の感度特性について図 2.7 図 2.8 に示す.

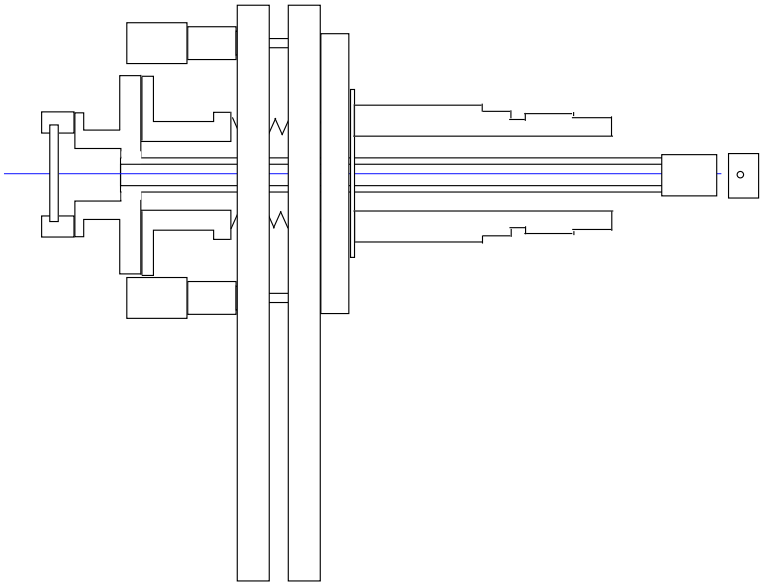

図 2.5: ミラーホルダーの概略図. ホルダーに取り付けられたマイクロメーターによってミラーの位置を制御する

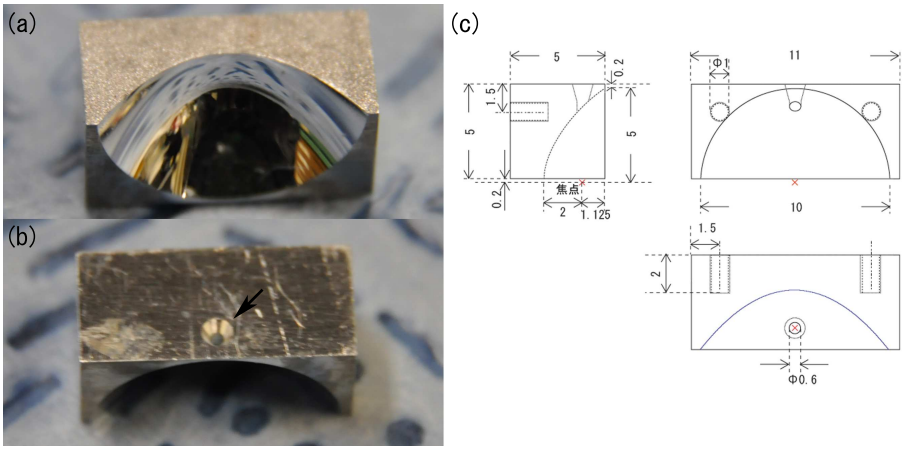

図 2.6: (a),(b) 放物面ミラーの外観．(a) はが下面，(b) は上面からの撮影である．矢印で示すように電子線を通すための穴が空いている．(c) ミラーの設計図

集光ミラー	放物面ミラー 大きさ 11mm×5mm×5mm 集光立体角 60%
CCD カメラ	浜松ホトニクス製 C7190-20 感度領域 200nm〜500nm 画素数 680×1000,9mm×14mm
フォトンマップ測定系	分光器 JOBIN YVON 製 H-20(Vis.) 波長駆動装置 コスモシステム製 CAC-101 光電子増倍管 浜松ホトニクス R943-02 光電子増倍管冷却装置 浜松ホトニクス C2761 プリアンプ Stanford Reseach Instruments SR-445 フォトンカウンタ 愛宕物産製 PC-1405
分光器 マルチチャンネル CCD	ラムダビジョン製 LVNC-1 グレーティング ラムダビジョン製分光機 150/mm CCD 素子 Marconi 社 LVC3011
制御装置	ラムダビジョン製 SpectraMap

表 2.2: 光学系性能

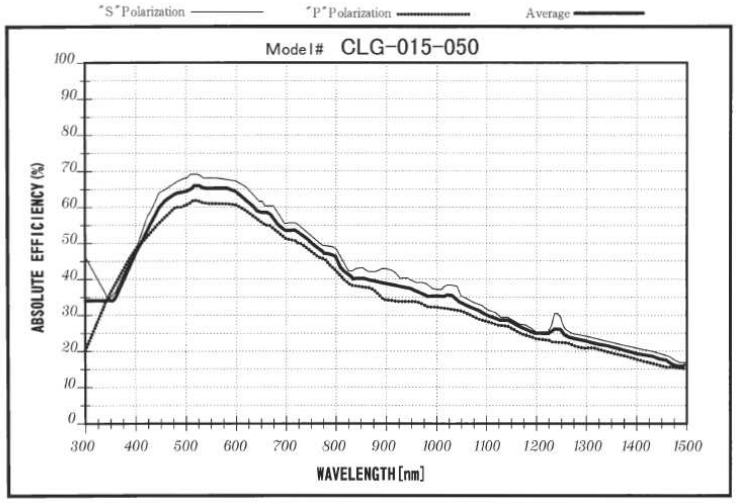

図 2.7: グレーティングの感度特性 (株) ラムダビジョンより提供

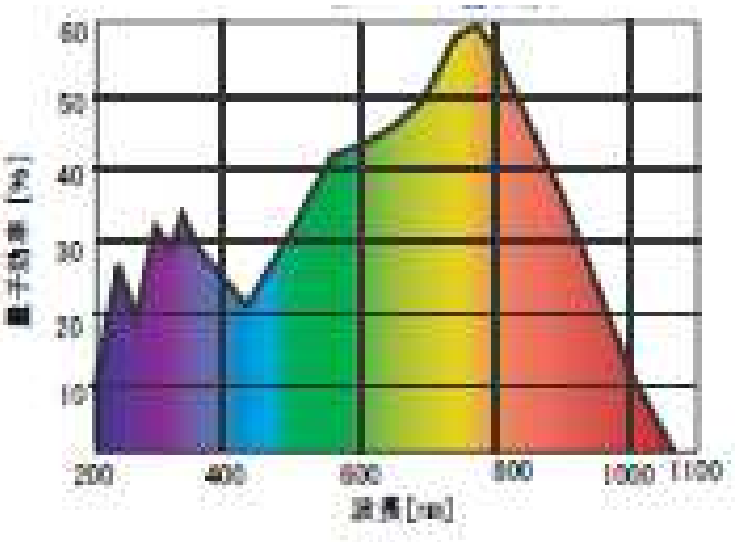

図 2.8: マルチチャンネル CCD 感度特性 (株) ラムダビジョンより提供

2.2 試料作製方法

本研究で用いた試料はInP 基板上に電子線リソグラフィーを用いて作製されたナノ構造に銀を真空蒸着したものである．試料作製には文部科学省支援事業のナノネットに依頼をした．作製した試料形状は

- Single step 形状 (第 3 章)
- 1 次元周期構造 (第 4 章)
- 線欠陥を持つ 1 次元周期構造 (第 5 章)

である．試料形状の詳細については各章で述べる．

2.2.1 銀蒸着

試料に対する銀の蒸着は 5×10^{-4}Pa 程度の真空ベルジャー内で行った．フィラメントにはタングステンを用いて，蒸着源の銀は ϕ=0.5mm の銀線を用いた．W フィラメントに銀線を取り付け，4〜6A の電流をフィラメントに流し加熱し蒸着を行った．長さ L，半径 r の銀線を完全に蒸発させたときに蒸着源から距離 R の位置で試料が作る球殻の体積 $4\pi R^2 dr$ は蒸着源に取り付けた銀線の体積 $\pi r^2 L$ と等しいと考えられる．(図 2.9) よって膜厚 D は dr と等しいので膜厚は

$$D = \frac{r^2 L}{4R^2} \tag{2.1}$$

の関係になる．膜厚が薄いと，InP-Ag 界面に励起した SPP と Ag-真空界面に励起した SPP がカップリングを起こすので，カップリングを避けるように本研究では膜厚を 200nm とした．そのときの蒸着条件は蒸着源から試料までの距離 R=25mm とし，(2.1) 式を用いた銀線の長さ L=8.3mm となる．蒸着はすべて室温で行い，試料表面の酸化の影響を抑えるために蒸着後はできるだけ早く電子顕微鏡内に導入した．

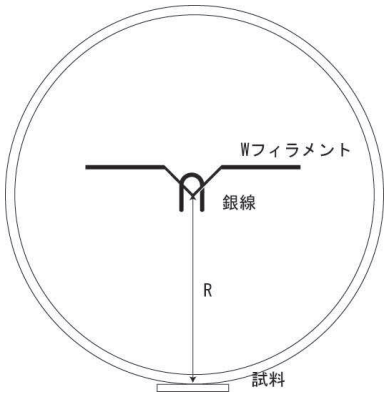

図 2.9: 真空蒸着の配置．W フィラメントから熱により昇華した銀は一様な厚さの球殻を作ると考えて蒸着膜厚を決定する

2.3 測定方法

本研究では試料からの放射光の測定方法として，主に以下の小節に示す 3 つの手法を用いた．図 2.2 に示すように試料からの放射光は放物面ミラーで平行光線に変えられた後，光線方向の 3 方向切り替えを行うことで，

(1) CCD カメラ

(2) 分光器+マルチチャンネル CCD

(3) 分光器+PMT

の 3 種類の方法で検出が可能である．CCD カメラでは 2.3.1 節に示すミラー像を測定することで試料からの放射状態を観察できる．マルチチャンネル CCD では 2.3.2 節で説明する放射角度分解発光スペクトル，および 2.3.3 節で説明するラインプロファイルが測定できる.PMT では発光スペクトルの角度積分された電子線入射位置依存性である, フォトンマップが測定できる．本節では本研究で使用した手法であるミラー像の観察, 放射角度分解発光スペクトル測定, ラインプロファイル測定について説明を行う.

2.3.1 ミラー像

本研究では試料からの放射状態を可視化するために CCD カメラを用いている．図 2.2 に示す三方切り替え装置で光線方向を CCD カメラ側に向かうようにすることで集光ミラーの像を直接観察することが可能である．図 2.10 に平坦な銀表面に電子線を入射したときに得られるミラー像を示す．このミラー像を観察することにより集光状態を直接確認できる.

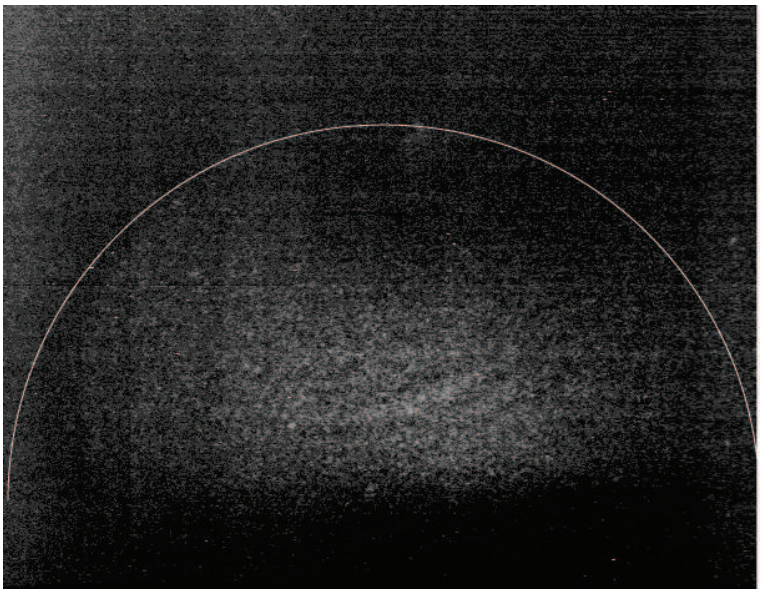

図 2.10: p 変更で測定した銀平坦面におけるミラー像．図中の白線はミラーの外周を示している．一様な放射が観察されている

2.3.2 放射角度分解発光スペクトル像

本研究では放物面ミラーを用いることで放射角度分解された発光スペクトルの測定が可能である．本小節では測定手法と放物面ミラーの特性について放射角度分布と立体角補正について説明する

2.3.2.1 放射角度分布

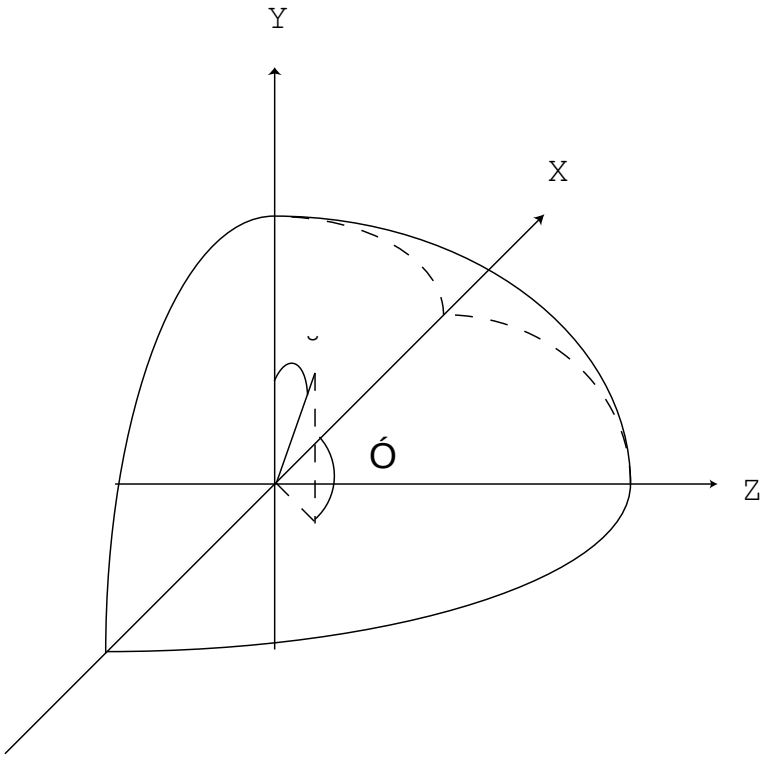

図 2.11: ミラーに固定した直行座標系 X,Y,Z と極座標 θ, ϕ

放物面ミラーの模式図とミラーに固定した座標系を図 2.11 に示す．放物面の方程式は

$$x^2 + y^2 = 4p(p - z) \tag{2.2}$$

で表される．放物面の焦点位置 (図中では $(x, y, z) = (0, 0, 0)$) から ϕ, θ の方向に放射された光が距離 r でミラーと交差すると考えるとその座標は

$$(x, y, z) = (r \sin\theta \cos\phi, r \cos\theta, r \sin\theta \sin\phi) \tag{2.3}$$

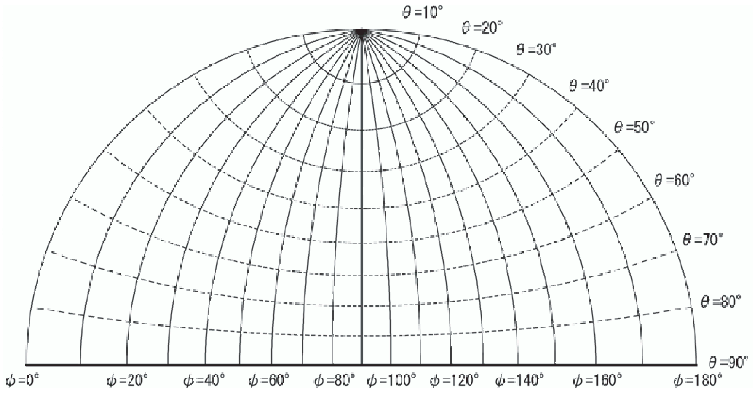

図 2.12: ミラーを図 2.11Z 方向から見た等角度面

となるこれら (2.2) 式，(2.3) 式から放物面における放射角度と直交座標の関係は

$$r = \frac{2p}{1+\sin\theta\sin\phi} \tag{2.4}$$

$$x = r\sin\theta\cos\phi = 2p\frac{\sin\theta\cos\phi}{1+\sin\theta\sin\phi} \tag{2.5}$$

$$y = r\cos\theta = 2p\frac{\cos\theta}{1+\sin\theta\sin\phi} \tag{2.6}$$

$$z = r\sin\theta\sin\phi = 2p\frac{\sin\theta\sin\phi}{1+\sin\theta\sin\phi} \tag{2.7}$$

となる．$x-y$ 面における等角度線を図 2.12 に示す．実線が等 ϕ 線, 破線が等 θ 線を示す．y 軸上 ($\phi=\pi/2$) では (2.5) 式は単純になり，y 座標と放射角度 θ との関係は

$$y = \frac{2p\cos\theta}{1+\sin\theta} \tag{2.8}$$

$$\sin\theta = \frac{4p^2-y^2}{4p^2+y^2} \tag{2.9}$$

のように表される．本研究で用いたミラーは

$$x^2+y^2 = 8(2-z) \tag{2.10}$$

で表され (p=2)，このミラーにおける Y 座標と θ の関係を示したのが図 2.13 である．

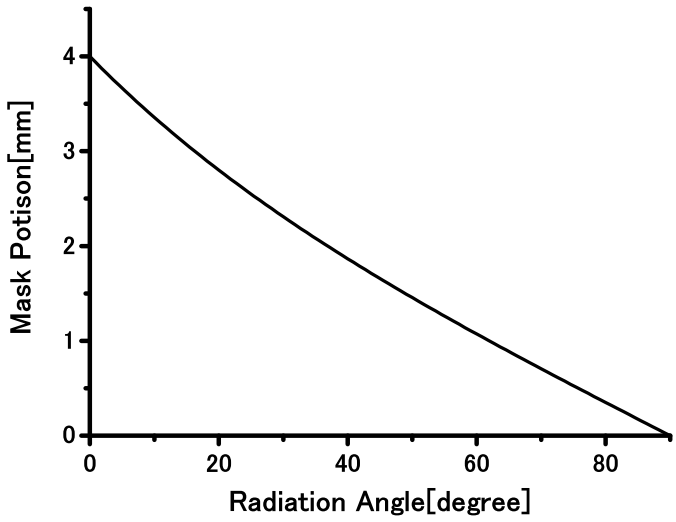

図 2.13: y 軸上 (ϕ=0°) における y 座標と放射角度 θ の関係

2.3.2.2 測定方法

図 2.2 に示すように, 偏光素子とマルチチャンネル CCD の間には $X-Y$ ステージが置かれている．このステージの中心に ϕ0.5mm の孔の開いたマスクを入れることにより, 特定の放射角度の光のみを検出することができる．放射角度分解発光スペクトルの測定方法を図 2.14 に示す. 試料からの放射は放物面ミラーにより平行光として電子顕微鏡の外に引き出される．その後, 偏光素子によって偏光方向を選択され, マスクの位置に対応する放射角の光のみが検出器まで届く. この測定をマスクの位置を変えながら連続して測定を行い, 得られたデータを次節で説明する方法で放射角度 θ に変換し, さらに立体角補正を行い，横軸を放射角度 [deg], 縦軸をエネルギー [eV] として発光の強弱を明暗で示す図とする. 得られた図を放射角度分解発光スペクトル像と呼ぶ.

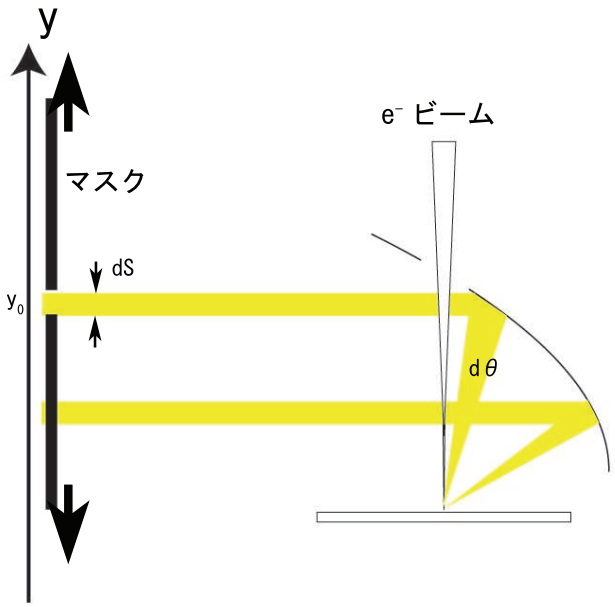

図 2.14: Y-Z 平面で描いた放射角度分解発光スペクトル像測定の模式図．電子線入射位置を固定した状態で直径 0.5mm の穴のあいたマスクを Y 軸にそって動かすことで発光スペクトルの放射角度依存性が調べられる

2.3.2.3 座標変換

この手法で得られる測定結果はマスク位置 y[mm] - エネルギー E[eV] 空間における強度分布を示す．得られた実験結果に対して解析を行う場合，マスク位置を用いるよりも放射角 θ[deg] や波数 k[nm^{-1}] に変換することが必要である．以下に (y,E) 座標から (θ,E),(k,E) へ変換する方法について説明する．

放射角度分解発光スペクトル像の測定データはエネルギー × 位置のデータ列として得られる．測定データ点を基準として座標変換を始めるとデータの密度に差が出てきてしまう．そこで以下に示すようなプログラムを作成し，得られた実験データの座標変換を行った．放射角度，波数共に変換式以外は同様であるので，ここでは放射角度に変換する場合を説明する．

(1) 放射角度-エネルギー空間に空のデータ列 $(n \times m)$ を用意する

(2) それぞれのデータ点 (θ_n,E_m) を座標変換してマスク位置-エネルギー空間における位置 (y_n,E_m) を求める

(3) 測定データ列において (y_n,E_m) に近い 4 点を調べる

(4) 得られた 4 点の強度を距離で重み付けし平均したものを (y_n,E_m) の強度とする

各座標変換における具体的な変換式については以下で説明を行う．

放射角度への変換　光変換効率の放射角度依存性をみるには，放射角度への変換は不可欠である．この変換は (2.9) 式を使うことで行うことが出来る．

波数への変換　得られた SPP 放射が波数空間においてどのような位置に対応するのかを知るためには波数空間への座標変換が必要となる．

エネルギー E[eV] の光の持つ波数は

$$E = \hbar\omega = c\hbar k \tag{2.11}$$

で求めることができる．このため放射角度が変わっても光の波数は変化しない．しかし放射角度が変わるということは面内の波数成分 $k_{//} = k\sin\theta$ が変化することになる．このため放射角度分解発光スペクトル像を波数空間に変換するというのは，光の面内の波数-エネルギー空間に変換するという意味になる．エネルギー E, 面内の波数 $k_{//}$ のときその放射方向 θ は

$$\sin\theta = \frac{k_{//}}{k} = \frac{c\hbar k_{//}}{E} \tag{2.12}$$

となる．さらに (2.9) 式から

$$y = 2p\sqrt{\frac{k-k_{//}}{k+k_{//}}} = 2p\sqrt{\frac{E-c\hbar k_{//}}{E+c\hbar k_{//}}} \tag{2.13}$$

となる．この式が成り立つために $k \geq k_{//}$ である必要がある．この二つが等しいときは光が面内の放射 (θ=0°) の場合である．

2.3.2.4　立体角補正

本研究では図 2.14 に示したように放物面ミラーと検出器の間にマスクを入れることで放射角度分解測定を行っている．この手法においてマスクの位置 y によって集光される放射光の立体角 $d\theta$ に変化が現れる．そのため発光スペクトルの正確な放射角度依存性を調

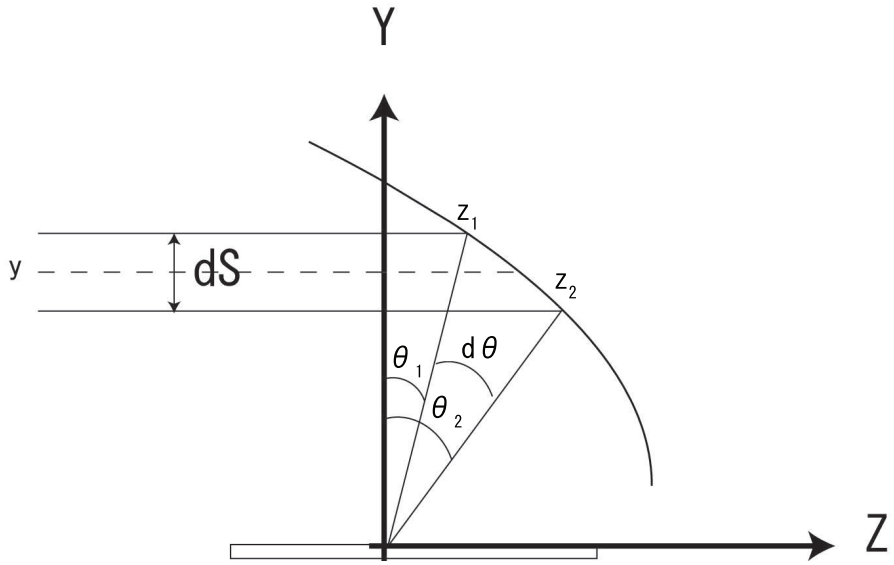

図 2.15: $Y-Z$ 面内における $Y=y$ を中心とした幅 dS の立体角 $d\theta(y)$

べるためには座標変換 Y-k 節で行った座標変換のときに立体角補正を行う必要がある．本研究では ϕ=0° の面内でのみ実験を行ったので，今回は ϕ=0° の面内についての立体角補正のみを考える．

図 2.15 に示すように，y を中心として dS の幅に入射する光のみが検出されることを考える．そのときの立体角 $d\theta$ は $y+dS/2$ と $y-dS/2$ におけるミラーとの交点から，本研究で用いたミラー ((2.10) 式) では

$$\begin{aligned} d\theta(y) = \theta_1 - \theta_2 &= \tan^{-1}\frac{y+dS/2}{z_1} - \tan^{-1}\frac{y-dS/2}{z_2} \\ &= \tan^{-1}\left[(y+d/2)/\frac{16-(y+dS/2)^2}{8}\right] \\ &- \tan^{-1}\left[(y-d/2)/\frac{16-(y-dS/2)^2}{8}\right] \end{aligned} \tag{2.14}$$

となる．この計算により求められる立体角の比を用いることで立体角補正ができる．検出される光の強度は $d\theta$ の 2 乗になるので立体角補正関数 $F(y)$ は y=0(θ =90°) を基準とすると

$$F(y) = \left(\frac{d\theta(0)}{d\theta(y)}\right)^2 \tag{2.15}$$

のようになる．図 2.16 にマスクの直径 0.5mm を dS としたときの立体角の比 (a) と立体角補正関数 $F(y)$(b) を示す．y=4(θ =0°) と y=0(θ =90°) では 2 倍立体角が異なっている．この立体角補正関数 $F(y)$ で補正した 2eV における遷移放射の放射角度依存性が図 2.17 である．黒線が立体角補正する前，赤線が立体角補正した後のデータを示し，点線は理論計算によるものである．補正前は低角度側の強度が理論値に比べて小さかったが，立体角補正によって理論計算の結果とよい一致を示すようになった．

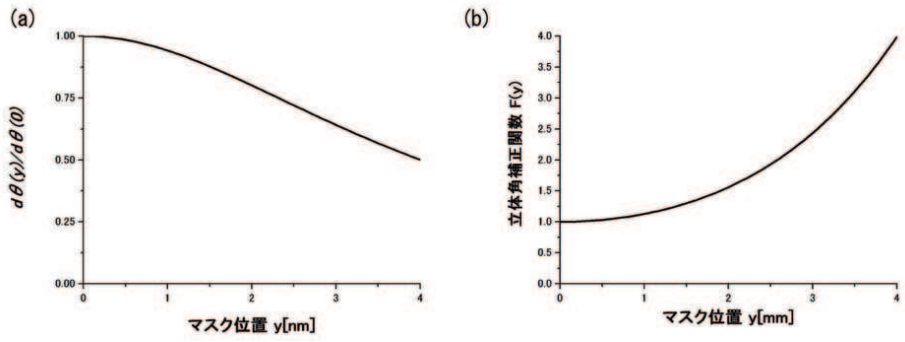

図 2.16: (a)y=0(θ =90°) の立体角を基準とした立体角の比. (b) 立体角補正関数 $F(y)$.

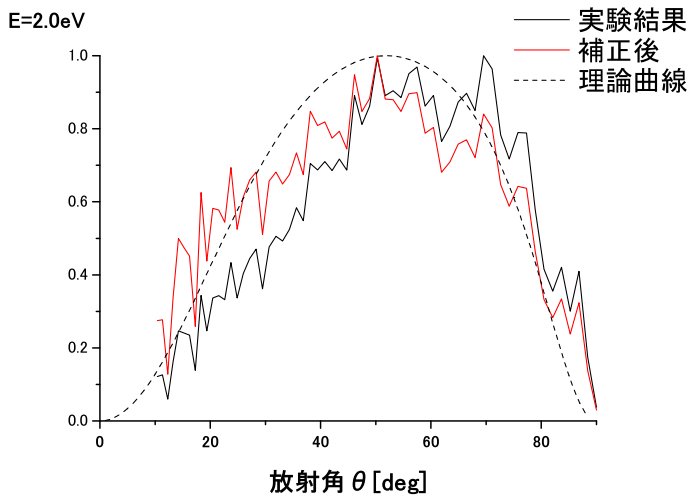

図 2.17: 遷移放射の角度依存性．黒線が立体角補正する前，赤線が立体角補正した後のデータ．点線は理論計算によるもの

2.3.3 ラインプロファイル

本研究では SPP - 光変化の空間分布を測定するためにラインプロファイル像の測定を行っている．本小節ではその手法について説明をする．測定に使用する光学系は前小節で示した放射角度分解発光スペクトル像測定のものと同様である．放射角度分解発光スペクトル像測定では電子線ビームを固定してマスクを制御したのに対して，ラインプロファイル像測定ではマスクを固定，もしくは外し，電子ビームを試料上でスキャンさせながら各点で発光スペクトルを測定するというものである．図 2.18 にその概略図を示す．本手法の特徴は，マスクを入れた状態で発光スペクトルの電子線入射位置依存性 (励起位置依存性) を調べることができるため，放射強度の放射角度に依存した励起位置依存性を調べることが可能な点にある．

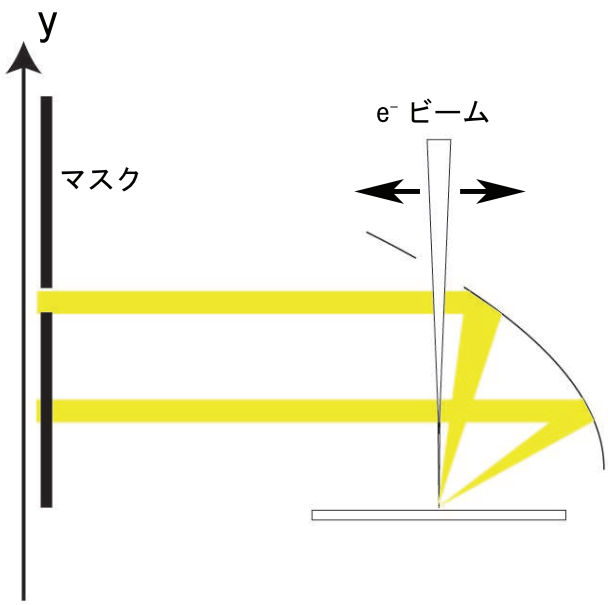

図 2.18: $Y-Z$ 平面内で描いたラインプロファイル像の測定方法．特定の放射角度方向に対応する位置にマスクを固定し，電子線をスキャンさせながら各点で発光スペクトルを測定することで発光スペクトルの励起位置依存性を調べることができる

第3章　単一ステップ構造におけるSPP放射

3.1　目的

金属表面に励起した表面プラズモンポラリトン (SPP) は平坦な表面では光と結合することはない．金属表面に励起した SPP の分散曲線の観察は主に ATR 法を用いて行われている．ATR 法では測定に用いる試料は薄膜である必要があり，試料形状に一定の制限が入ることになる. 平坦な表面においては光と結合することない SPP だが，表面にナノ構造があると，ナノ構造によって SPP が散乱されることにより光と結合することが可能である. しかしながら, 表面ナノ構造による SPP の変換効率は，その形状によって変化するため，定量的な理解をすることは難しい.

本章では，電子線により励起された SPP がステップ端によって散乱され放射する光を検出することによりステップ端における SPP 放射の性質を調べる. ステップ端によって SPP が光に変換される時，SPP がステップ上部からステップ下部に伝播する場合と，ステップ下部からステップ上部に伝播する場合では，その性質に違いが表れると考えられる．そこで本実験ではテラス幅 20μm，高さ 100nm のテラスを試料として用いた．SPP の伝播距離は波長 500nm(2.5eV) で 10 μ m 程度であり，このテラスの二つの独立したステップ端による放射を調べる実験では互いの影響を無視できる.

3.2 節では，電子線入射位置によるステップ端の光変換の違いを調べ，3.3 節ではステップ端からの光放射の放射角度依存性について調べた．これらの結果をもとに Single egde における SPP －光変換効率について 3.4 節で考察を行う.

3.1.1　試料形状

本研究で用いた試料形状の SEM 像を図 3.1 に示す．InP 基板上に電子線リソグラフィーで 10μm×200μm の広さを持ち高さ 100nm のテラス構造を作製し，その上に銀を 200nm 蒸着した.

3.2　ステップ端からの放射の電子線入射位置依存性

本節では，電子線入射により励起された SPP がステップ端に到達し光に変換される過程においてどのような電子線入射位置依存性があるのかを調べる. 具体的には特定の放射方向に進む光の偏光特性，電子線照射位置依存性について観察を行った.

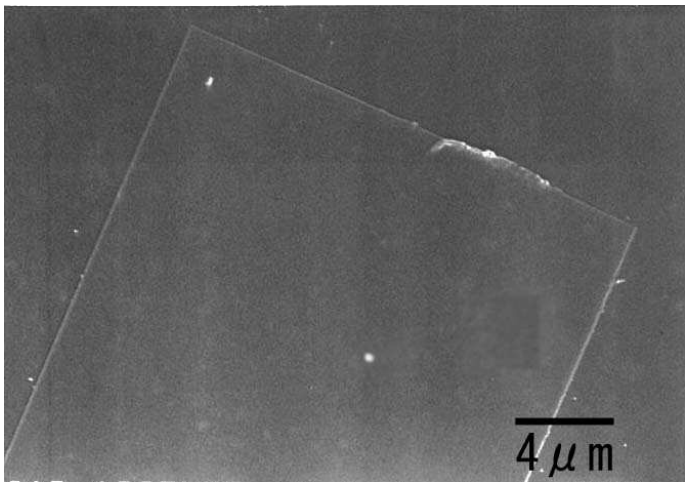

図 3.1: 試料の SEM 像. InP 基板上に作製した矩形テラスを独立した二つのステップ端とみなした.

3.2.1 光検出方向がステップ端と垂直な場合

図 3.2 に光検出方向がステップ端の延伸方向と垂直で角度 $\theta = 44°$ に放射する光のみを検出する条件で測定を行ったラインプロファイル像を示す. 図 3.2(a) に示すように，ステップ下部からステップ上部へ電子線プローブをスキャンした時の p 偏光の結果を図 3.2(b) に，s 偏光の結果を図 3.2(c) に示す．同様に図 3.2(d) に示すようにステップ上部からステップ下部へ電子線プローブをスキャンした時の p 偏光の結果を図 3.2(e) に，s 偏光の結果を図 3.2(f) に示す. 今後それぞれの測定条件を Down-Up(図 3.2(a)),Up-Down(図 3.2(d)) と呼ぶ．測定範囲はステップ端を中心として $\pm 5\mu m$ の範囲である. 横軸が電子線照射位置であり縦軸が検出した光のエネルギー (eV) である. 得られたラインプロファイル像を見ると，どちらのスキャンでも S 偏光では放射強度が表れていない. また p 偏光の結果見ると，Down-Up,Up-Down ともにフリンジが見られる．エネルギーによってその周期は異なり，さらにどちらもステップ端を中心としてフリンジの周期は左側では長く, 右側では短くなっている．その周期は E=2.23eV($\lambda = 556nm$) において,Down-Up では左側 (ステップ下部) で 1.59μm, 右側 (ステップ上部) では 0.526μm であり,Down-Up では左側 (ステップ上部) で 1.72μm, 右側 (ステップ下部) では 0.377μ であった．また，ステップ端からのフリンジの位相を見ると，Up-Down ではステップ端の両側で暗いコントラストから始まり，Down-Up では明るいコントラストから始まっており，位相が異なっていることが確認された.

3.2.2 光検出方向がステップ端と平行な場合

図 3.3 に光検出方向がステップ端の延伸方向と平行で角度 $\theta = 44°$ に放射する光のみを検出する条件で測定を行ったラインプロファイル像を示す. 前小節で示した測定条件では Up-Down と Down-Up は測定条件が異なっているが，ステップ端に平行な方向に放射する場合にはその違いは現れない．図 3.3(a) に示すようにステップ上部からステップ下部に電

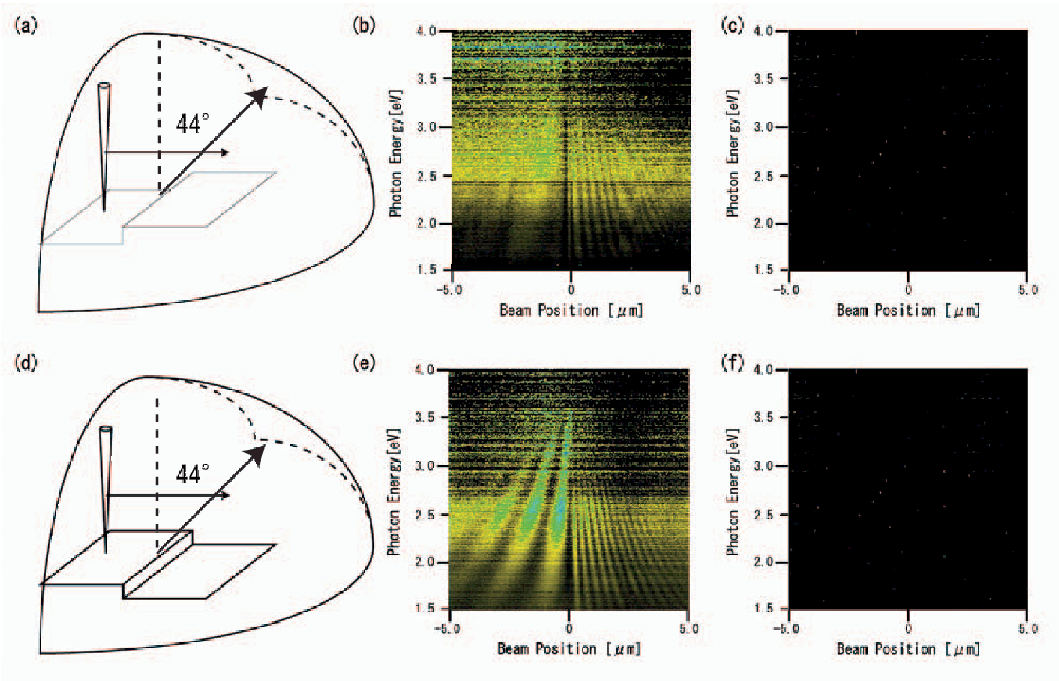

図 3.2: 放射角方向を 44° に固定し，ステップ端と垂直方向に電子線をスキャンしたラインスキャン像 (a),(b),(c) 集光ミラーがステップ上部側にある場合.(a) 測定条件 (b) p 偏光の結果，(c)s 偏光の結果. (d),(e),(f) 集光ミラーがステップ下部側にある場合.(d) 測定条件 (e) p 偏光の結果，(f)s 偏光の結果.

子線をスキャンさせた時に得られたラインスキャン像を図 3.3(b)(p 偏光),(c)(s 偏光) に示す．ステップ端に垂直な方向に放射する場合と同様にステップ端を中心として $\pm 5\mu$m の範囲で測定を行っている. 横軸が電子線照射位置であり縦軸が検出した光のエネルギー (eV) である. 得られたラインプロファイル像を見ると，p 偏光では図 3.2(b),(e) と比べ低いコントラストのフリンジが表れ，フリンジの周期はステップ端に垂直な方向に放射する場合と異なり，ステップ端の左右で同じ周期になている．その周期は E=2.23eV($\lambda = 556nm$) において 820nm であった．また s 偏光においてはステップ端には強い発光強度が見られるが，ステップ端以外の場所では発光強度の観察はできなかった.

3.2.3 ラインプロファイル像の放射角度変化

前節に示したラインスキャン像では，ステップ端の延伸方向と垂直な方向に放射する光を検出したとき, あらわれたフリンジは非対称であった (図 3.2(b),(e)). そこで，この非対称性について詳しく調べるために，図 3.2(d) に示す実験条件 (Up-Down) で，p 偏光のラインスキャン像の放射角度依存性を調べた．図 3.4 に得られたラインプロファイル像を示す. 測定範囲は同様に $\pm 5\mu$m である．検出角度は (a)12°,(b)20°, (c)30°, (d)40°, (e)44°, (f)50°, (g)56°, (h)62°, (i)68°, (j)80°, (k)87° である．検出角が小さいときには，左右に現れるフリンジの周期の差は小さい．しかしながら放射角度が大きくなるに従いステップ上部側のフリンジの周期が長くなり，ステップ下部側の周期は短くなっている．また強度を見ると

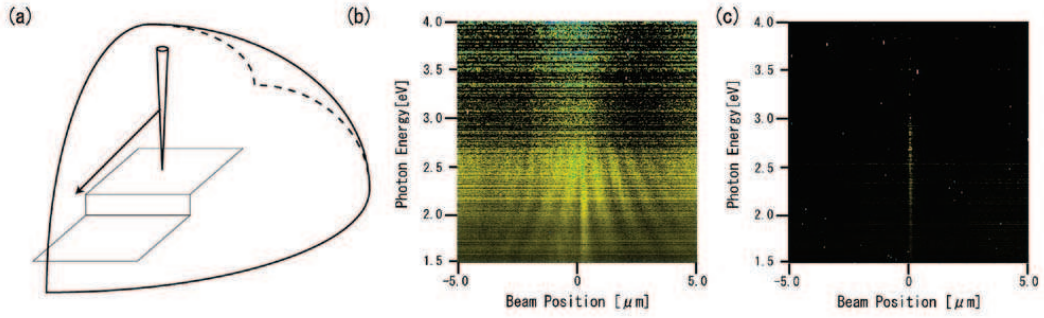

図 3.3: 図 3.2 の実験条件から試料を 90° 面内で回転させ，放射角 θ=44° に放射する光を検出する条件で測定したラインスキャン像. (a) 測定条件, (b)p 偏光の結果,(c)s 偏光の結果

検出角 45° 付近にピークを持ち低角側，高角側ともに強度は落ちている．

同様に図 3.2(a) に示す Down-Up の条件において放射角度を変化させて測定したラインプロファイル像を図 3.5 に示す．検出角度は (a)14.2°,(b)22.6°, (c)27.1°, (d)36.8°, (e)42.0°, (f)47.5°, (g)65° である．図 3.4 と同じように検出角度によってフリンジの周期が変化している．

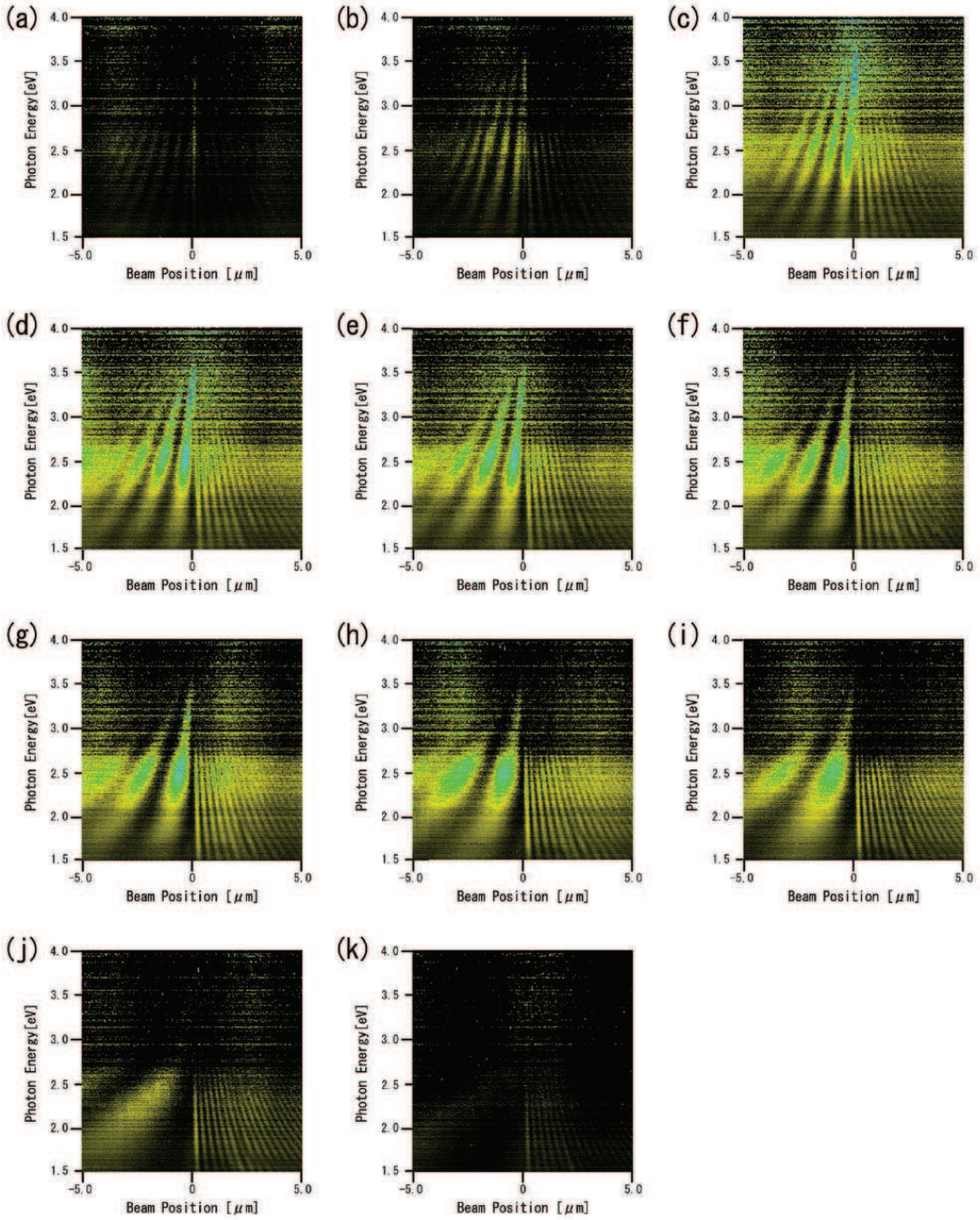

図 3.4: 検出角を変えた時のラインスキャン像の変化．実験条件は図 3.2(d) と同じであり検出角度を (a)12°,(b)20°, (c)30°, (d)40°, (e)44°, (f)50°, (g)56°, (h)62°, (i)68°, (j)80°, (k)87° に変えて測定した．

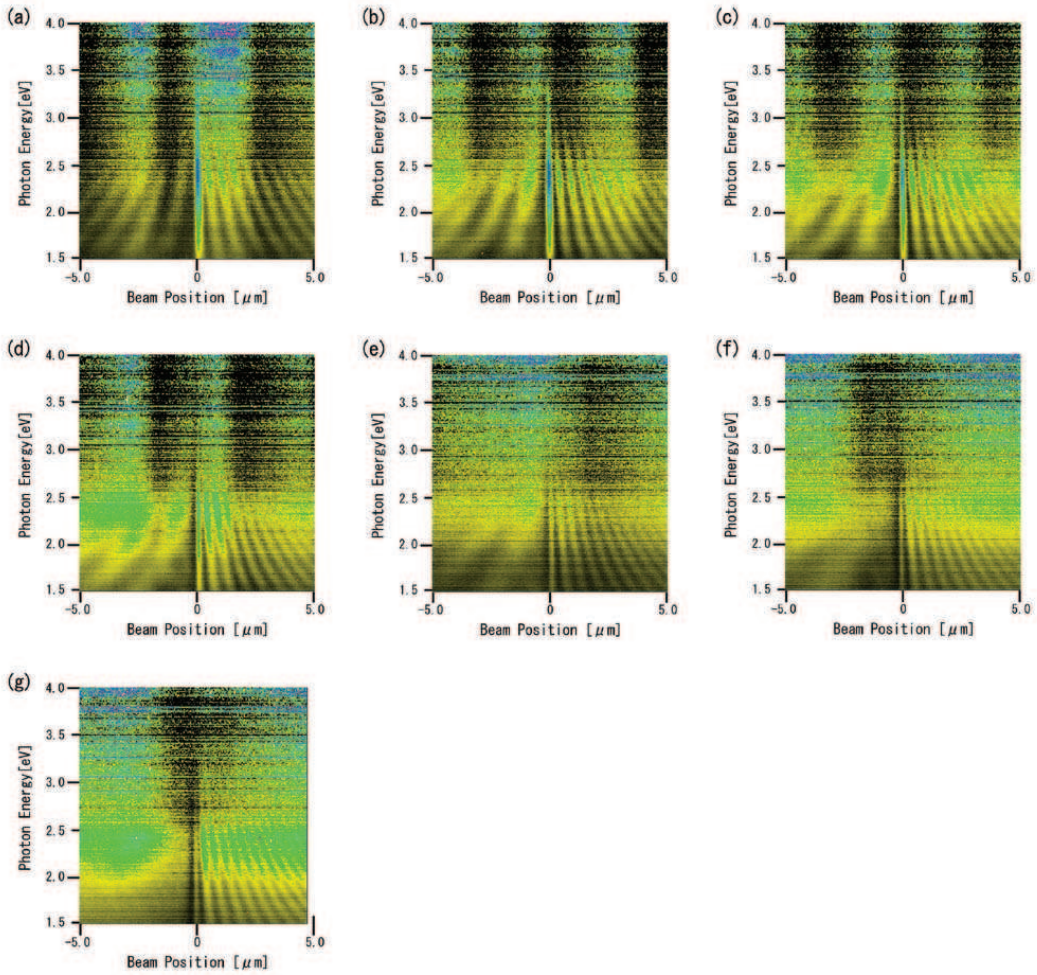

図 3.5: 検出角を変えた時のラインスキャン像の変化．実験条件は図 3.2(a) と同じであり検出角度を a)14.2°,(b)22.6°, (c)27.1°, (d)36.8°, (e)42.0°, (f)47.5°, (g)65° に変えて測定した．

3.3 ステップ端からの放射の放射角度分解発光スペクトル像

これまでに測定したステップ端からの放射の角度依存性をより詳しく調べるために，放射角度分解発光スペクトル像を測定した．ステップ端の延伸方向と垂直向きに検出器を置いた条件で，測定は電子線プローブをステップ端から x だけ離れた位置に照射して行った. 測定はステップ端の座標を $x = 0$ とし，集光ミラーに近い側に x 軸の正方向をとったとき，$x = -4\mu m$ から $x = 4\mu m$ まで $1\mu m$ 間隔で計 9 点測定した．得られた放射角度分解発光スペクトル像を図 3.6 と図 3.7 に示す. 図 3.6 が Up-Down の場合，図 3.7 が Down-Up の場合である. 測定角度は $\theta = 0°$ から $\theta = 90°$ の間で行った. 測定位置はそれぞれ (a)x=-4μm, (b)x=-3μm, (c)x=-2μm, (d)x=-1μm, (e)x=0μm(ステップ端), (f)x=1μm, (g)x=2μm, (h)x=3μm, (i)x=4μm である. 得られた放射角度分解発光スペクトル像を見るとエネルギーによって位相の異なるフリンジが表れている.x 位置が負のときには $\theta = 0°$ から $\theta = 90°$ になるにしたがい，低エネルギー側から高エネルギー側に変化するフリンジが現れ,x が正のときには逆に高エネルギー側から低エネルギー側に変化するフリンジが現れた．またそのフリンジの幅は測定位置の正負に関係なくステップ端から遠ざかるほど周期は短くなる. またステップ端に対応する $x = 0\mu m$ の場所ではフリンジのようなコントラストは現れず，高角度側に強い強度を持つ一様な発光が現れた．Down-Up のデータは Up-Down のデータに比べてフリンジの現れ方が弱い．これはステップ端の側面が，放物面ミラー側から隠れいているためではないかと考えられる．

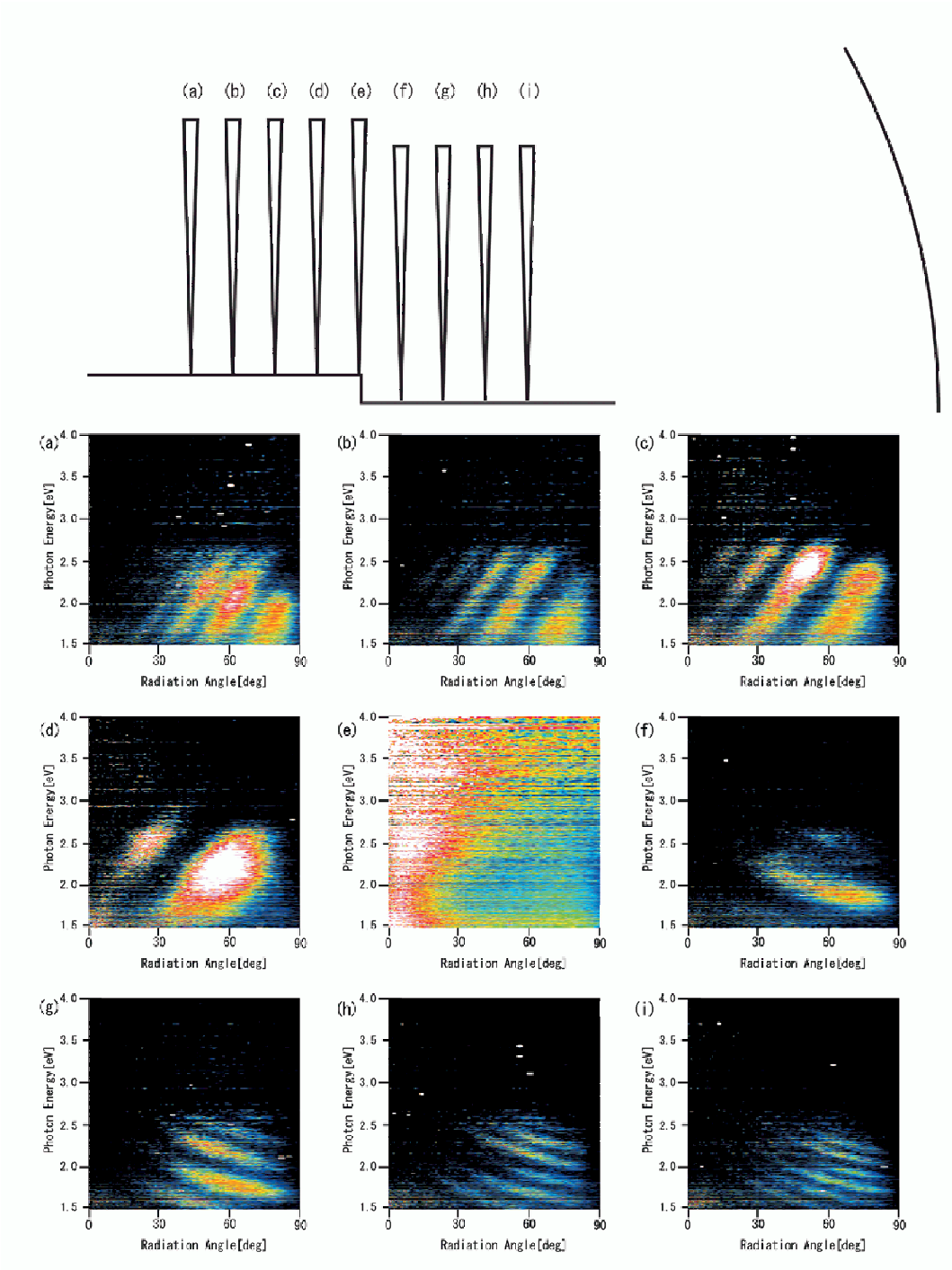

図 3.6: Up-Down のステップ端からの距離を変えて測定した放射角度分解発光スペクトル像. 測定角度は 0° から 90° であり，ステップ端までの距離を (a)x=-4μm,(b)x=-3μm,(c)x=-2μm,(d)x=-1μm,(e)x=0μm(ステップ端),(f)x=1μm,(g)x=2μm,(h)x=3μm,(i)x=4μm である．$x < 0$ が Up 側に，$x > 0$ が Down 側に対応している．

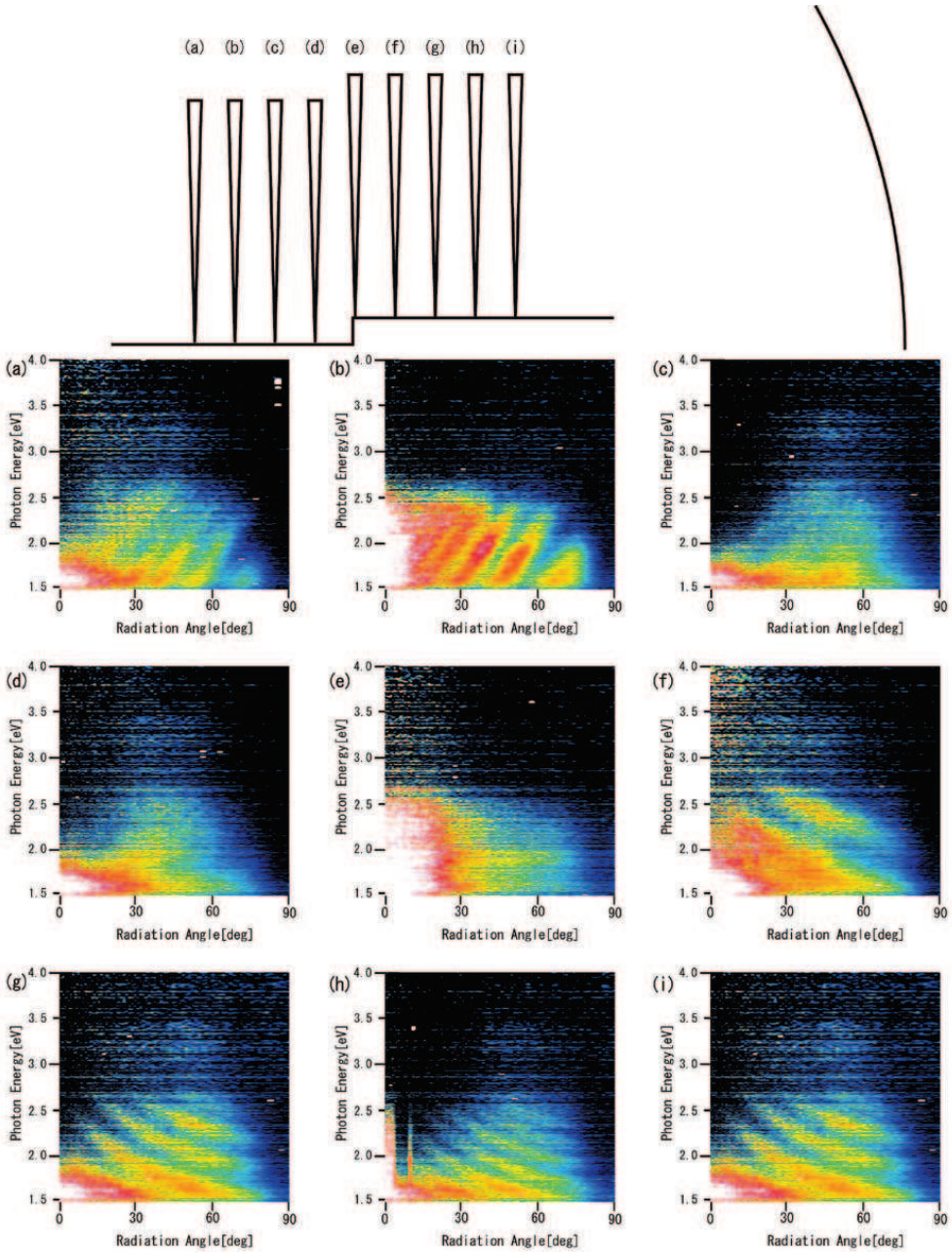

図 3.7: Down-Up のステップ端からの距離を変えて測定した放射角度分解発光スペクトル像. 測定角度は 0° から 90° であり，ステップ端までの距離を (a)x=-4μm,(b)x=-3μm,(c)x=-2μm,(d)x=-1μm,(e)x=0μm(ステップ端),(f)x=1μm,(g)x=2μm,(h)x=3μm,(i)x=4μm である．$x < 0$ が Down 側に，$x > 0$ が Up 側に対応している．

3.4 考察

本節ではこれまでに得られた結果を元にステップ端における SPP-光変換の発光過程モデルを提案し，そのモデルからステップ端における SPP - 光変換の特性について考察した．

3.4.1 発光過程のモデル

これまでに得られた実験結果からステップ端における周囲に電子線を照射した場合の発光過程のモデルを考える. ラインプロファイル像と角度分解発光スペクトル像に見られたフリンジは干渉効果によって得られたものである．今回の測定において考えられるモデルは以下の二つである.

(1) 電子線によって励起した SPP が伝播し，ステップ端によって反射された時に起こる干渉によってフリンジが表れる (図 3.8(a)). このモデルの場合フリンジの周期はステップ端に向かって入射する SPP とステップ端から反射された SPP の重ね合わせで形成される SPP 定在波の腹と腹の間隔，すなわち SPP 波長の半分 $\lambda/2$ となる．そのため SPP の波長にのみ依存し放射角度に依存しない.

(2) 電子線が入射した位置から放射する遷移放射 (TR) と，同時に励起した SPP が伝播しステップ端から放射する光 (SPPR) との干渉によってフリンジが現れる (図 3.8(b)). このモデルではフリンジの周期は SPP が伝播する距離に相当する位相差と放射位置の違いによる位相差によって決まるため，フリンジの周期は放射角度に依存する.

このことから明らかなように今回の実験で得られたフリンジ状のコントラストは 2 のモデルによって説明できると考えられる. このモデルを使って得られたラインプロファイル像と角度分解発光スペクトル像の解析を行うが，電子線入射により励起した SPP は電子線入射位置を中心に球面波的に広がっていくことを考えなくてはならない. 図 3.9 に z 方向から描いた SPP の広がりとステップ端による光変換のモデルを示す. 検出器は十分遠方にあると考えられるのでステップ端からの放射角度 (θ) は位置によらず一定であると考えることができる. ステップ端から電子線入射位置までの距離を x_0 とするとステップ端 $\boldsymbol{r} = (x_0, y)$ に到達した SPP の波動の表式は電子線の強度を 1 とした時,

$$\psi(y) = \frac{A_{SPP}}{\sqrt{\sqrt{x_0^2 + y^2}}} \exp\left(ik_{SPP}\sqrt{x_0^2 + y^2}\right) \tag{3.1}$$

と書くことができる.A_{SPP} は電子線による SPP の励起確率を示している.SPP-光変換の確率を S_{SPP} とすると検出器に届く SPPR の振幅は

$$\int_{\infty}^{-\infty} (A_{SPP} S_{SPP} \frac{1}{\sqrt{\sqrt{x_0^2 + y^2}}} \exp i\left(\boldsymbol{k}_{SPP}\sqrt{x_0^2 + y^2}\right) \exp i(\boldsymbol{k}_{ph} \cdot \boldsymbol{R} \pm \boldsymbol{k}_{ph} \cdot \boldsymbol{r} - \omega t + \delta) dy \tag{3.2}$$

となる．$\boldsymbol{R}$ は電子線入射位置から検出器までの距離であり，δ は SPP-光変換時の位相差を示す．$\boldsymbol{k}_{ph} \cdot \boldsymbol{r}$ の前の符号は電子線入射位置と対応し，検出器に近い側なら＋，遠ければ-となる.

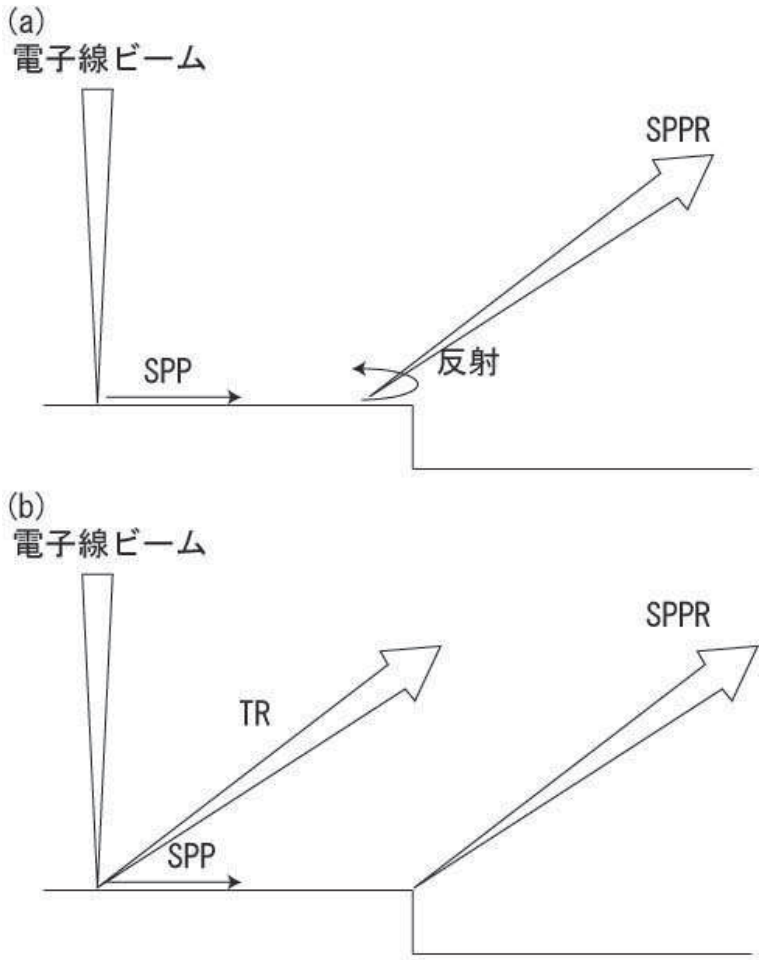

図 3.8: ステップ端における発光モデル (a)SPP の定在波の干渉効果,(b) 遷移放射と SPPR の干渉

図 3.10 に示すステップ端における SPP の振幅をみると,y 軸上で積分したとき，y=0 近傍以外の振幅は互いにキャンセルする．そのため，検出される光は電子線入射位置からステップ端に垂直に向かう SPP からの放射によるものと近似できる．

次に先ほどのモデルによって検出される光の強度について考える. 図 3.11 に 1 次元で考えた遷移放射（TR) − SPPR 干渉のモデルを示す. 電子線を入射すると入射位置から遷移放射が放射され，同時に SPP が入射位置を中心に励起される．励起された SPP は表面を伝播して，ステップ端で光に変換される. このとき，遷移放射と SPPR との位相差は SPP が励起されてからステップ端に到達するまでの位相差と，放射位置によって生じる光路差による位相差に分けることができ，ステップ端から距離 x だけ離れた位置に電子線を照射

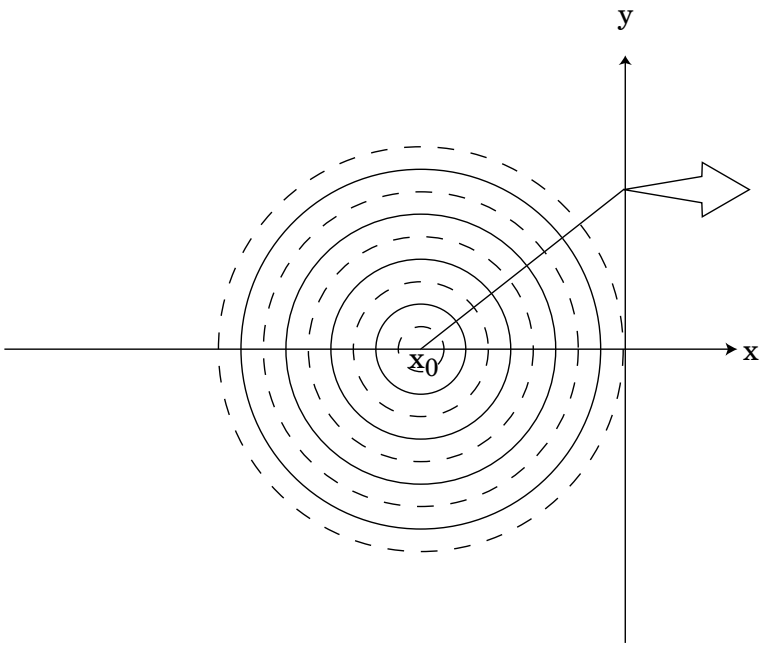

図 3.9: 球面波励起した SPP の Sinlge ステップ端における光変換

したときに検出器に到達する光の振幅は近似的に,

$$\begin{aligned}\Psi_{All} &= \psi_{TR} + \psi_{SPPR} \\ &= \frac{S_{TR}}{R}\exp i(\boldsymbol{k}_{ph}\cdot\boldsymbol{R} - \omega t) \\ &+ \frac{A_{SPP}S_{SPP}}{R\sqrt{x}}\exp i(k_{SPP}x \pm k_{ph}x\sin\theta + \delta)\exp i(\boldsymbol{k}_{ph}\cdot\boldsymbol{R} - \omega t)\end{aligned} \tag{3.3}$$

と書ける. ここで S_{TR} は遷移放射の振幅確率であり，δ は SPP 励起時の位相差 δ_{SPP},SPP が光に変わるときの位相差 δ_{SPPR} を足し合わせたものである ($\delta = \delta_{SPP}+\delta_{SPPR}$). $\exp i(\boldsymbol{k}_{ph}\cdot\boldsymbol{R} - \omega t)/R$ は全ての項に共通のため以下では無視する．よって検出される光の強度 I は

$$\begin{aligned}I &= \mid \Psi_{All} \mid^2 = \mid \psi_{TR} + \psi_{SPPR} \mid^2 \\ &= \mid \psi_{TR} \mid^2 + 2 * \psi_{TR} * \psi^*_{SPP} + \mid \psi_{SPPR} \mid^2 \\ &= I_{TR} + I_{SPPR}/x + \frac{2S_{TR}S_{SPP}A^*_{SPP}}{\sqrt{x}}\cos\left[k_{SPP}\cdot x \pm k_{ph}\cdot x\sin\theta + \delta\right] \\ &= I_{TR} + I_{SPPR}/x + \frac{2S_{TR}S_{SPP}A^*_{SPP}}{\sqrt{x}}\cos\left[x(k_{SPP} \pm k_{ph}\sin\theta) + \delta\right]\end{aligned} \tag{3.4}$$

となる．I_{TR}, I_{SPPR} は遷移放射，SPPR の強度を示し，第 3 項が干渉による強度変化を表す．(3.4) 式の指数部分に注目すると得られるフリンジの周期は SPP の波数 (k_{SPP}) と光の波数の面内成分 ($k_{ph}\sin\theta$) に依存していることが分かる．光の波数はエネルギー E から

$$E = \hbar\omega = c\hbar k_{ph} \tag{3.5}$$

で与えられるため，得られた実験結果に対してフィッテングを行うことにより SPP の波数を求め，分散曲線を導くことができる．

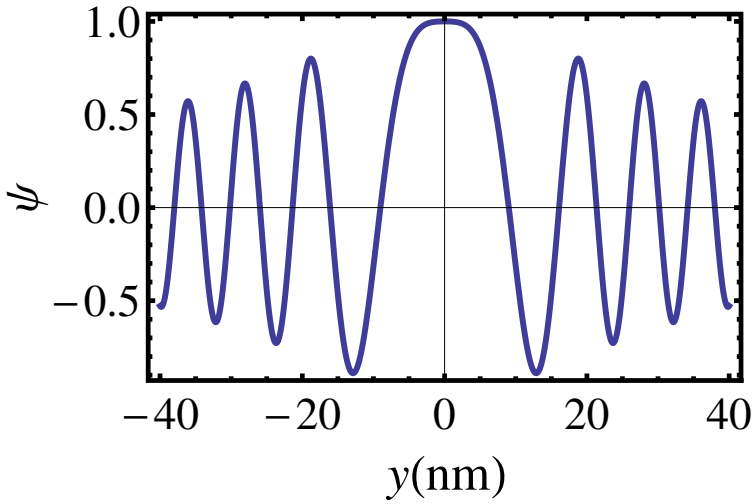

図 3.10: ステップ端における SPP の波動関数

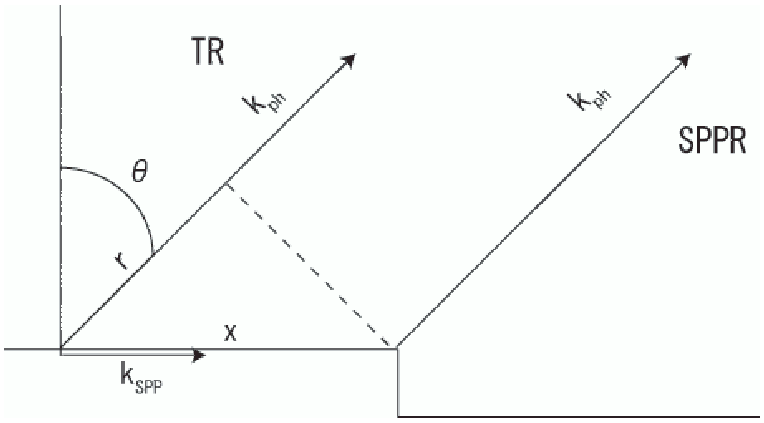

図 3.11: ステップ端における TR − SPPR 干渉モデル

3.4.2 SPP 分散曲線の導出

本小節では前小節で得られたモデルの妥当性を明確にするために，ラインプロファイル像に対して (3.4) 式を用いてフィッテイングを行う．

前節で導出した TR-SPPR 干渉の (3.4) 式を用いて実験で得られた干渉フリンジから平坦な Ag 表面を伝播するの SPP の分散関係を導く．(3.4) 式は

$$\begin{aligned} I^{\pm} &= I_{TR} + I_{SPP} + \frac{2S_{TR}S^*_{SPP}A^*_{SPP}}{\sqrt{x}}\cos(K^{\pm}x+\delta) \\ K^{\pm} &= k_{SPP} \pm k_{ph}\sin\theta \end{aligned} \tag{3.6}$$

となる．図 3.2(b) に示した $\theta = 44°$ で測定した p 偏光のデータの E=2.25eV における強度分布が図 3.12(a) である．x=0 のステップ端を境界として左側が K^-, 右側が K^+ の波数の振動を表している．(3.6) 式でフィッティングを行った結果が, 図 3.12(a) 中の赤線である．得られた結果は $K^- = 0.653\times10^{-3}nm^{-1}$,$K^+ = 3.20\times10^{-3}nm^{-1}$ であった．(3.6) 式から

$$\begin{aligned} k_{SPP} &= (K^+ + K^-)/2 \\ k_{ph}\sin\theta &= (K^+ - K^-)/2 \end{aligned} \tag{3.7}$$

となる．この式から SPP の波数を求めると $k_{SPP} = 1.926\times10^{-3}nm^{-1}$ である．この結果は銀の表面において理論的に求められる SPP の波数 $k_{SPP} = 1.901$ とよく一致している．同様に 1.5eV から 2.5eV の間で k_{SPP} を求めプロットしたのが図 3.12(b) であり，図中の理論曲線と良い一致を示している．このことからもラインスキャン像に現れたフリンジは遷移放射とステップ端において光変換された SPP の干渉によるものであることが明らかである．また実験結果のフィッテイングによって得られた SPP-光変換の位相差 δ を図 3.13 に示す．ステップ上部の位相差はエネルギーによらずほぼ 0.5π であったがステップ下部の位相差は高エネルギー側 (2.5eV) では 0.5π であったが低エネルギー側に移るに従い大きな位相差をとるようになり 2eV で 0.75π 程度になっている．

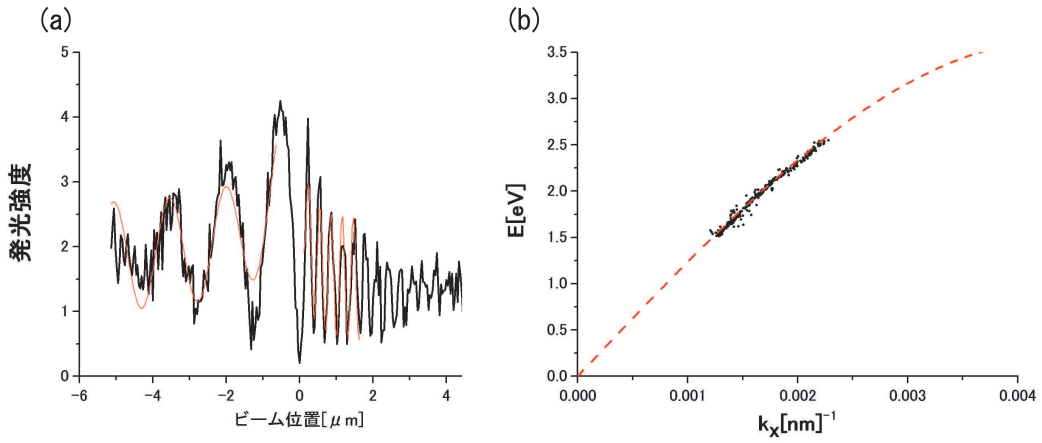

図 3.12: 放射角 $\theta = 44°$ のラインプロファイル像における (a)E=2.25eV のラインプロファイル (黒線) とフィッテング結果 (赤線)．(b)(3.6) 式から求めたプラズモンの分散関係

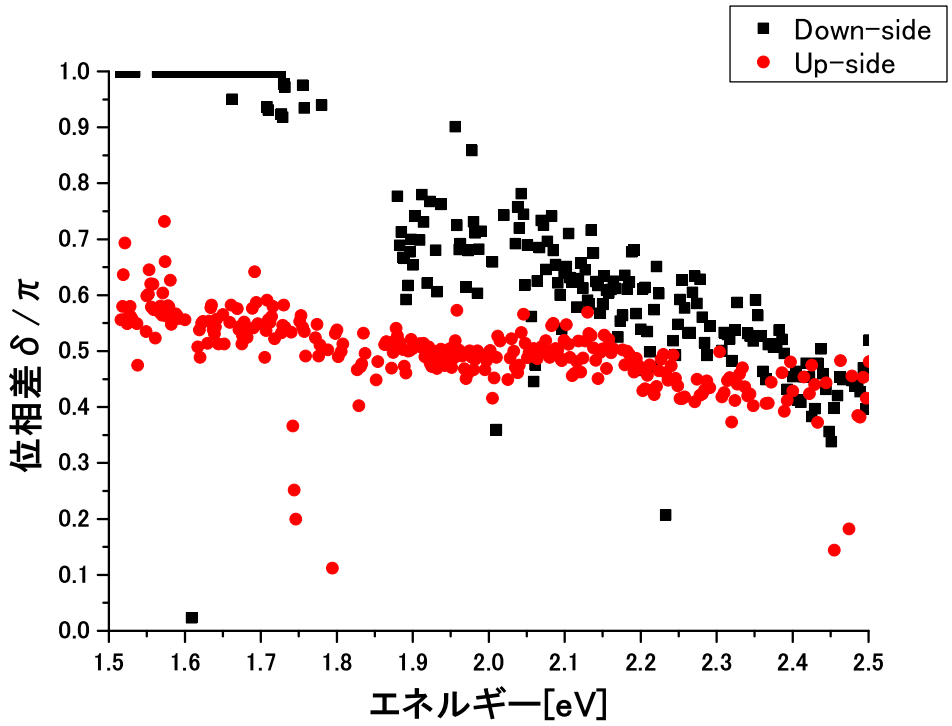

図 3.13: 放射角 $\theta = 44°$，Up-Down 配置における位相差 δ.

3.4.3 ステップ端における SPP-光変換効率の導出

これまでは $A_{SPP}, S_{SPPR}, \delta$ のエネルギー依存性および放射角度依存性については考えていなかった．しかしながら SPP 励起確率 A_{SPP} は SPP のエネルギーに依存することが理論的に明らかであり，S_{SPPR} と δ は実験結果からエネルギーおよび放射角度依存性があることが明らかである．そこで本小節では得られた実験結果から (3.4) 式における SPP-光変換効率 (S_{SPP}) の放射角度依存性を放射角度分解発光スペクトル像測定の結果から求める．

測定位置のジオメトリーは同じで，ステップ端からの距離だけが異なる 2 点 (x_1, x_2) で測定される発光スペクトルの強度は，

$$
\begin{aligned}
I_1 &= |T|^2 + |AS|^2 \frac{1}{x_1} + 2|T^* AS| \frac{1}{\sqrt{x_1}} \cos(K^- x_1 + \delta) \\
I_2 &= |T|^2 + |AS|^2 \frac{1}{x_2} + 2|T^* AS| \frac{1}{\sqrt{x_2}} \cos(K^- x_2 + \delta)
\end{aligned}
\tag{3.8}
$$

と表すことができる．また実験で得られる遷移放射の強度 $I_{TR} = |T|^2$ であるので，遷移放射の発光強度の放射角度依存性とステップからの距離の異なる 2 点で測定した発光スペクトルの放射科角度依存性からステップ端における SPP-光変換効率の放射角度依存性を求めることができると考えられる．図 3.14(a) に図 3.4(a)($x_1 = 4\mu m$) と図 3.4(b)($x_2 = 3\mu m$)

に示した放射角度分解発光スペクトル像の $E = 2.25eV$ での発光強度の放射角度依存性を示す．黒線が図 3.4(a) に，赤線が図 3.4(b) に対応する．図中の緑の線は，同じ実験条件で測定した遷移放射の測定データである．この 3 つの測定データを (3.8) 式に代入し，SPP 励起確率と SPP-光変換効率の積 AS の放射角度依存性を求めたのが図 3.14(b) である．SPP の波数 k は理論値を用いて計算は行った．図 3.14 のプロット点が求まった SPP-光変換効率である．この結果から $\theta = 60°$ 付近にピークをもつブロードな形をもってることが分かる．

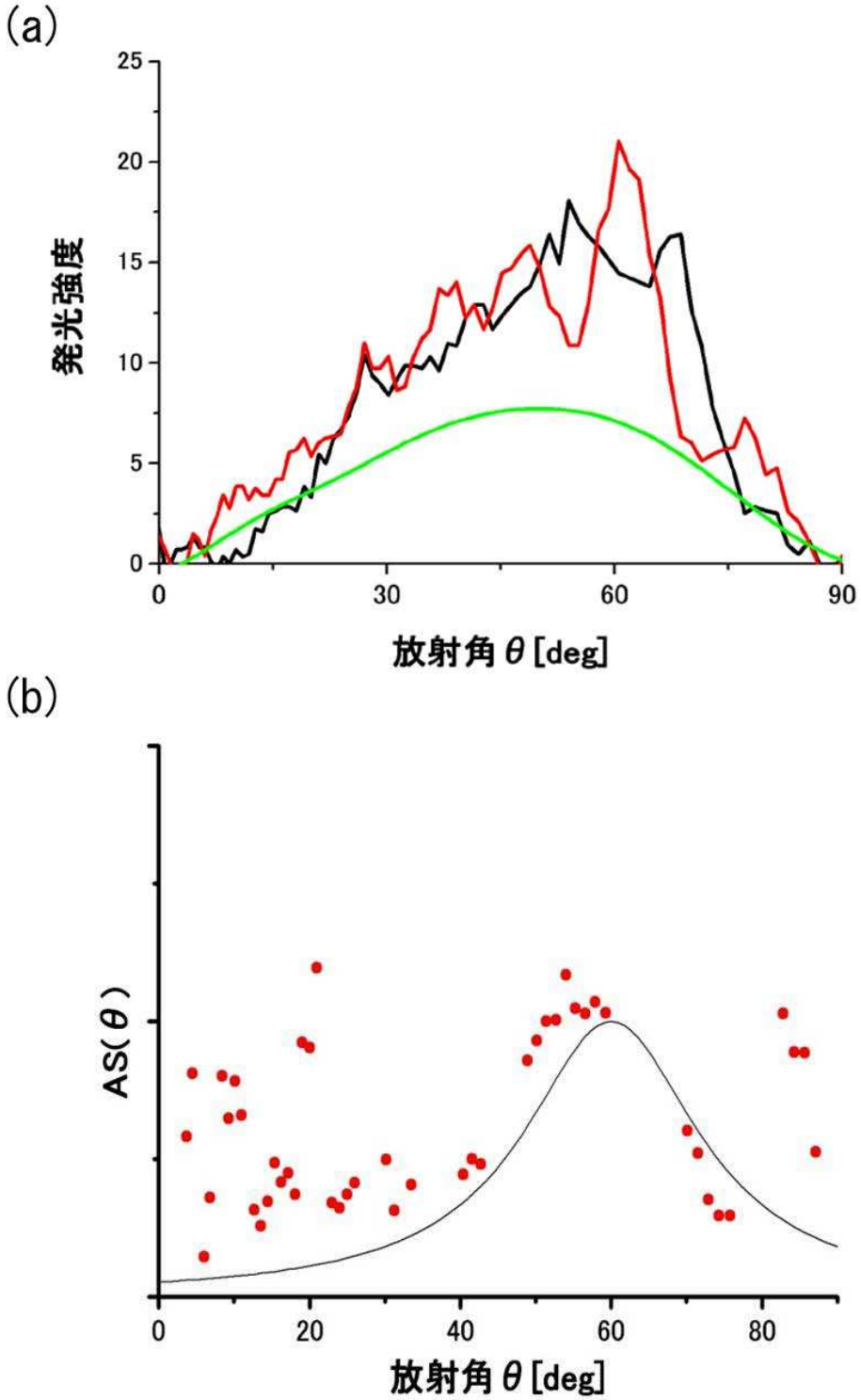

図 3.14: $U-D$ のステップ上部で測定した放射角度分解発光スペクトル像から導出した光変換効率 $AS(\theta)$．(a)E=2.25eV における発光強度の角度依存性, 黒線がステップ端から $4\mu m$, 赤線が $3\mu m$ で測定．緑線は遷移放射である．(b) 得られた SPP-光変換効率.

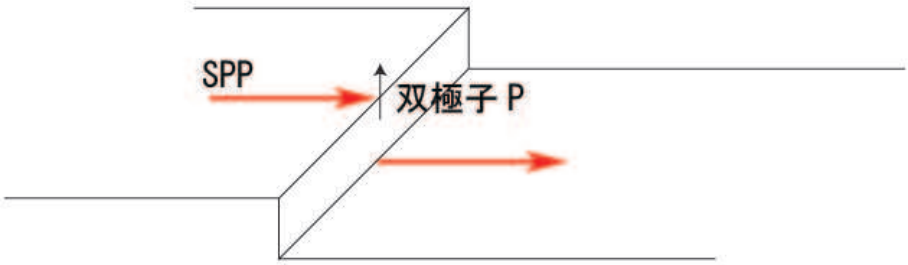

図 3.15: 光変換の双極子によるモデル．SPP はステップ端で図に示す矢印のような双極子として働くと考えられる．

3.4.4 SPP-光変換過程のモデル

これまでの解析によりステップ端における SPP - 光変換の性質が明らかになった．そこで本小節ではこれまでの結果から SPP がステップ端において光に変換される機構のモデルを立てる．これまでの結果で明らかになったステップ端における SPP 放射の性質は以下のようなものである．

- SPP の伝播方向に対して平行な放射面，垂直な放射面共に p 偏光の強度が強く，s 偏光の放射はほとんど検出されない．(図 3.2, 図 3.3)
- 光変換効率は θ=0°，θ=90° で弱くなっている．(図 3.14)

この SPP 放射を双極子を用いた近似で表すとすると，図 3.15 に表すような面内に垂直な方向を向いた双極子として表すことができる．これは表面を伝播する SPP がステップ端を通過すると，高さ方向に変位がおきるためにできる双極子であると考えられる．

3.5 結論

本章では，電子線励起発光顕微法で銀表面上に作製した高さ 100nm のステップ端からの SPP-光変換の性質について調べ以下の事を明らかにした．

(1) 電子線入射位置からの遷移放射とステップ端まで伝播した SPP との干渉によりラインスキャン像と放射角度分解発光スペクトル像にフリンジ状のコントラストが現れる．このコントラストの周期から伝播する SPP の波数を求めることができる．

(2) 放射角度分解発光スペクトル像からステップ端における SPP-光変換の放射角度依存性，位相差を求めた．

(3) 得られた放射角度依存性，偏光特性からステップ端における SPP-光変換はステップ端に面内な垂直な双極子を仮定する事で説明できる事を明らかにした

(4) ステップ端のエッジに電子線入射する事で，局在プラズモンが励起している．このエッジプラズモンの発光はステップ端に面内の双極子を置くことで説明できることを明らかにした．

これらの結果から電子線励起発光顕微法は金属表面のナノ構造による SPP - 光変換特性を調べるのに非常に有効な手段であることが分かった.

第4章　1次元周期構造におけるプラズモン発光

4.1　目的

金属表面が周期構造をもつことにより，ある波数のSPPがのブラッグ反射が起こりSPPの分散関係にギャップのある構造が生じる．このような金属表面構造はプラズモニック結晶と呼ばれ，減衰全反射 (ATR) 法を用いたプラズモニック結晶の分散曲線の観察や，近接場光学顕微鏡 (NSOM) を用いたプラズモニック結晶中の電場分布の観察など，光を用いた様々な手法で研究がなされてきた．近年，光学的手法に比べ，高い空間分解能を持ったSEM-CL法を用いて，プラズモニック結晶上を伝播するSPPによる発光の電子線入射位置依存性についての報告がBashevoyらによってなされ [20,35]，電子線を用いたプラズモニック結晶の観察法に対して注目が集まっている．しかしながら，プラズモニック結晶上のSPPによる発光の放射角度依存性の測定や，放射方向の違いによる発光強度の電子線入射位置依存性に対する報告は未だなされていない．

本章では，電子線励起発光顕微法の非常に高い空間分解能を生かして1次元周期構造におけるSPPの分散曲線と，そのバンドギャップ端のSPP定在波の空間分布の観察を行い，表面周期構造によるSPP-光変換の性質を明らかにした．

4.2節では周期構造によるSPP-光変換の放射角度変化と，SPPに起因する放射のいろいろな放射角度における発光スペクトルについて調べ，放射角度分解発光スペクトル像がSPP分散曲線を表すことを示す．4.3節では，周期を固定し，周期構造の表面形状を変化させたときのSPP分散曲線の変化について調べた．これらの結果を元に4.4節で考察を行う．

4.1.1　試料形状

本研究で用いた試料は図4.1に示すように高さ50nm，長さ15μmの矩形のテラスを25周期分配列したものである．周期Pとテラスの幅Dを変えた試料を電子線リソグラフィーで作製し，その上に銀を200nm蒸着したものを試料とした．図4.1に示すように，周期配列方向をX軸とし，周期配列方向に垂直な方向をY軸と定義した．4.2節では周期P=800nm，テラス幅D=320nmの試料を，4.3節では周期P=800nmとしD/Pを0．25(D=200nm)から0．75(D=600nm)まで変化させた試料を使用した実験結果について述べる．

4.2　電子線励起発光顕微法による1次元周期構造の観察

本節では電子線励起発光顕微法を用いて1次元周期構造によるSPP-光変換の放射角度分布およびSPPに起因する放射のいろいろな放射角度における発光スペクトルの電子線

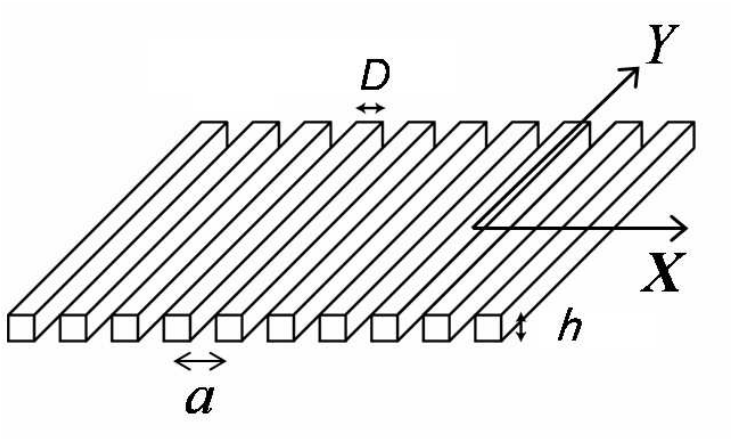

図 4.1: 1 次元矩形周期構造の試料形状．周期 P=800nm，テラスの高さ h=50nm とし，テラス幅を変えた試料を InP 基板上に作製した．

入射位置依存性を調べる．

4.2.1 放射角分解発光スペクトル

周期 800nm，テラス幅 320nm の 1 次元周期構造からの SPP 放射の放射角依存性を調べるために図 4.2(a) および (d) に示す配置で放射角度分解発光スペクトルの測定を行った．電子線で試料上の $5\mu m \times 5\mu m$ の範囲を走査した状態で測定を行った．図 4.2(a) と (d) に示すように $x-z$ 面内に放射する光を検出する条件で実験を行った．図 4.2(a) に示すように周期配列方向に平行な方向に放射する光を検出する配置 $(X//x)$ で測定した放射角度分解発光スペクトル像が図 4.2(b) と (c) である．図 4.2(b) が p 偏光，(c) が s 偏光の結果である．p 偏光における放射角度分解発光スペクトル像には特徴的な放射角依存性が見られ，明るい曲線状のコントラストが現れている．矢印で示す位置には曲線が交差するところでギャップが現れているが確認される．また s 偏光の結果ではすべての放射角度で発光強度は観測されなかった．

図 4.2(d) に示すように試料を z 軸の周りに 90 度回転させて周期配列方向に対して垂直な方向に放射する光を検出する配置 $(Y//x)$ で測定した放射角度分解発光スペクトル像が図 4.2(e) と (f) である．図 4.2(e) が p 偏光，(f) が s 偏光の結果である．p 偏光で測定した放射角度分解発光スペクトル像では広い範囲でブロードなスペクトルが観察された．また s 偏光では，図 4.2(c) とは異なり，5 つの明線が観察された．この明線は放射角度が大きくなるに従い高エネルギー側に曲がるという特徴を持っている．

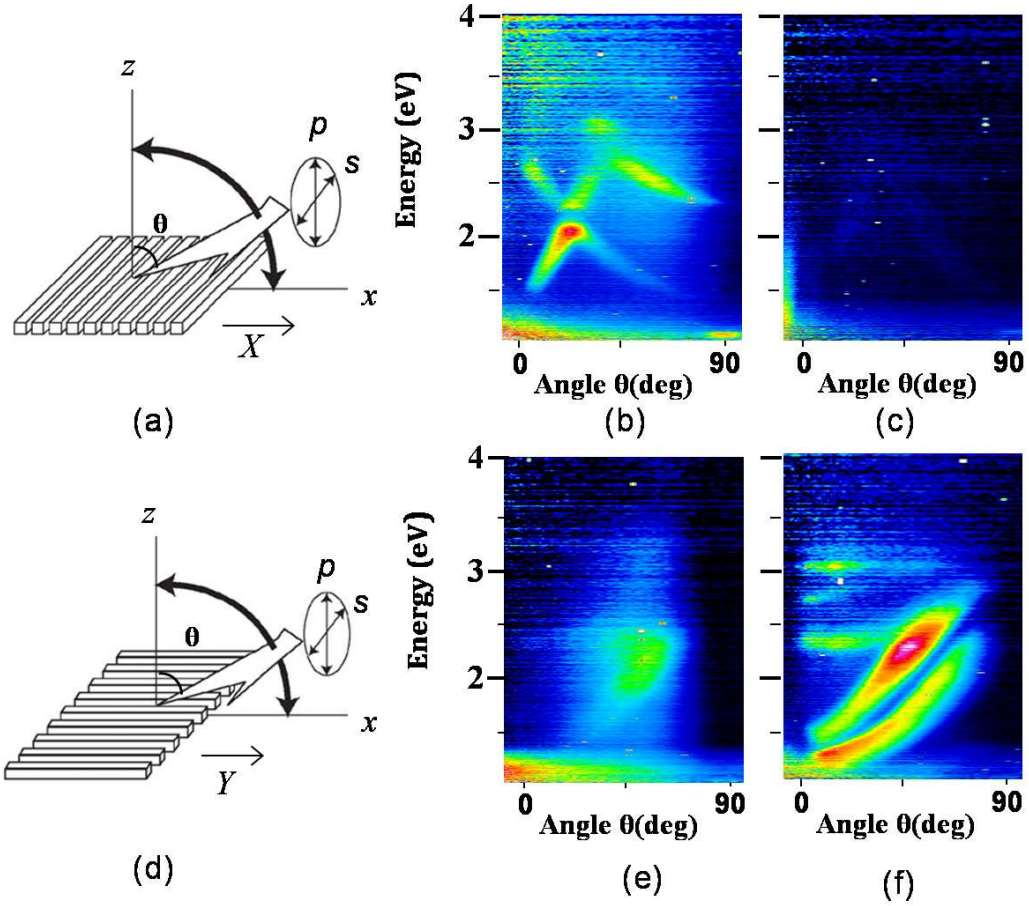

図 4.2: 周期 800nm，テラス幅 320nm の試料からの放射角度分解発光スペクトル像．(a) に示す X 方向に放射する光を検出するセッティングで測定したのが (b)p 偏光と (c)s 偏光である．(d) に示す Y 方向に放射する光を検出するセッティングで測定したのが (e)p 偏光と (f)s 偏光である．

4.2.2 1 次元周期構造中の分散曲線と放射角依存

得られた放射角度分布は特徴的な強度分布を示している．本節では，放射角度分解発光スペクトル像に現れた強度分布がプラズモニック結晶上の SPP の分散関係に関係していることを簡単に示す．

第 2 章の 2.3.2.3 節に示したように，検出する光の放射角度を変えることは，光の波数ベクトルの面内の成分 $\boldsymbol{k}_{//}$ を変えることと等しい．今回の実験条件では，検出する光は図 4.2(a) と (d) に示すように $x-z$ 面に平行な方向に放射する光である．よって光の面内の成分は

$$\boldsymbol{k}_{//} = k_{ph}\sin\theta \tag{4.1}$$

となる．ここで k_{ph} は光の波数の大きさである．図 4.2(b) と (e) に示した放射角度分解発光スペクトル像の横軸を波数に変換することは，光の面内の波数成分による発光強度変化を表すことになる．ここで，SPP と光の結合条件は

$$\mathrm{E}_{ph} = \mathrm{E}_{SPP} \tag{4.2}$$

$$\boldsymbol{k}_{ph}\sin\theta = \boldsymbol{k}_{SPP} \tag{4.3}$$

と書け，(4.2) 式はエネルギーの保存を意味し，(4.3) は面内の波数の連続条件を示す．(4.1) 式と (4.3) 式から，光の面内の波数を変化させると，対応する SPP の波数も変化することが分かる．検出される光の強度が強い $(k_{ph}\sin\theta, E)$ の位置には対応する (k_{SPP}, E) が存在すると考えれば，横軸を波数に変換した放射角度分解発光スペクトル像の強度分布はプラズモニック結晶中の分散曲線に対応すると考えられる．

図 4.2(a) の実験条件では周期配列方向 (X 方向) が $k_{//}$ に平行であるので，SPP の k_X 方向の分散曲線を表した強度分布が現れる．図 4.2(d) の実験条件では周期配列方向に垂直な Y 方向と $k_{//}$ が平行であるので，SPP の k_Y 方向の分散曲線を表した強度分布が現れる．

図 4.3 に図 4.2(b)，(f) に示した放射角度分解発光スペクトル像の横軸の放射角度を波数に変換したものを示す．図 4.3(a) が図 4.2(b) に，図 4.3(b) が図 4.2(f) に対応しており，それぞれの図の左側が平坦な表面における SPP 分散曲線を逆格子ベクトル G シフトして描いた曲線である．実験で得られたコントラストは，この分散曲線とよく対応している．図 4.3(a) では，二つの分散曲線の交点でバンドギャップが開いていることも確認できた．また図 4.3(b) では k_X=0 においてバンドギャップが開いているため，k_Y 軸に沿って縮退がとけ二つの分散線として観察されていると解釈できる．

これらはプラズモニック結晶の分散曲線の特徴を示しており，このことから 1 次元周期構造中に電子線を入射したときに得られる放射角度分解発光スペクトル像はプラズモニック結晶の分散曲線を表していることが分かる．

詳細な議論については後節 (4.4.1) において詳しく説明をする．

4.2.3 ラインスキャン

本実験で観察された 1 次元周期構造からの SPP に起因する放射のいろいろな放射角度における発光スペクトルの励起位置依存性を調べるために，放射角度を固定して電子線を 1 次元スキャンさせることでラインスキャン像の測定を行った．図 4.4 に図 4.2(a) に示す実験配置で p 偏光の場合に測定したラインスキャン像を示す．図 4.4(a) は図 4.2(b) に示し

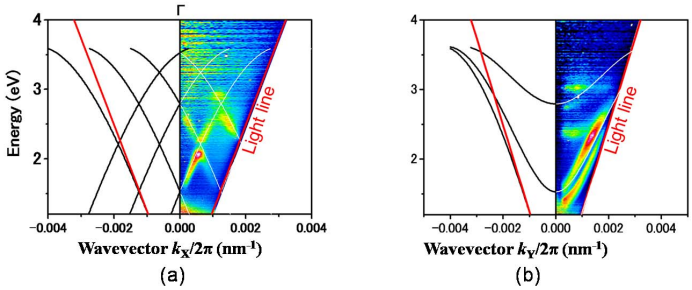

図 4.3: 周期 800nm の 1 次元プラズモニック結晶の空格子における分散曲線．(a) が k_X(周期配列方向)，(b) が k_Y(周期配列に垂直) 方向の分散曲線に対応する．それぞれの図における右側は図 4.2(b) と (f) の横軸を波数空間に変換したものである

た放射角度分解発光スペクトル像と同じものである．図 4.4(a) 中に矢印で示した 5 つの放射角度方向にマスクを固定して測定したラインスキャン像が図 4.4(b) から (f) である．それぞれの放射角度方向は (b)11° ， (c)27°， (d)34°， (e)45°， (f)50° である．各放射角度で周期的なコントラストが現れているのが見て取れる．放射角度を変えると位相と周期が変化している．またエッジ位置では縦方向に延びた強い直線状のコントラストが現れている．(図 4.4(b) 矢印)．

同様に図 4.5 に図 4.2(d) に示す実験配置で s 偏光の場合に測定したラインスキャン像を示す．図 4.4 と同様に図 4.5(a) 中に示した 2 つの矢印の放射角度において測定を行った．放射角度は (b)11° ， (c)45° である．やはり周期的なコントラストが現れているが，図 4.4 とは異なり，放射角度を変えてもエネルギーは変わるがその周期に変化はない．またエッジ位置には p 偏光のときと同様に強い直線状のコントラストが現れている．図 4.4 と図 4.5 においてエッジ部分に見られたスペクトルのスペクトル形状と偏光依存性は第 3 章で述べたエッジプラズモンによる発光の特徴と一致する．このことからエッジ位置の発光は図 4.4，図 4.5 共にエッジプラズモンによる発光であり SPP の関与は小さいことが分かる．

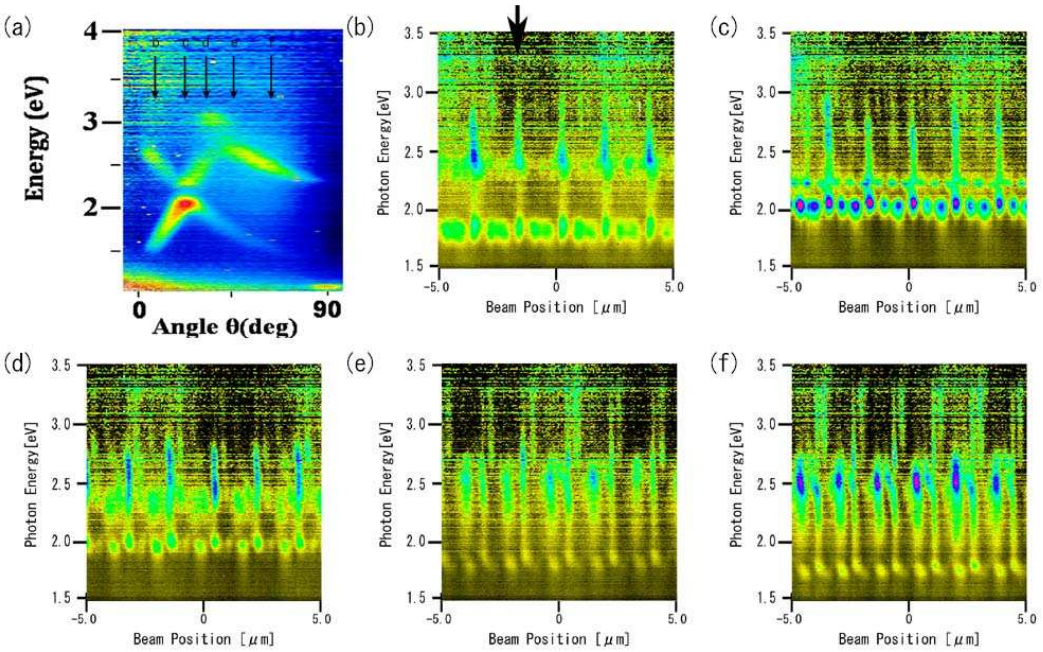

図 4.4: 周期 800nm，テラス幅 320nm の試料からのラインスキャン像．図 4.2(a) の配置で測定を行った．測定角度はそれぞれ (b)11° ， (c)27°， (d)34°， (e)45°， (f)50° である．

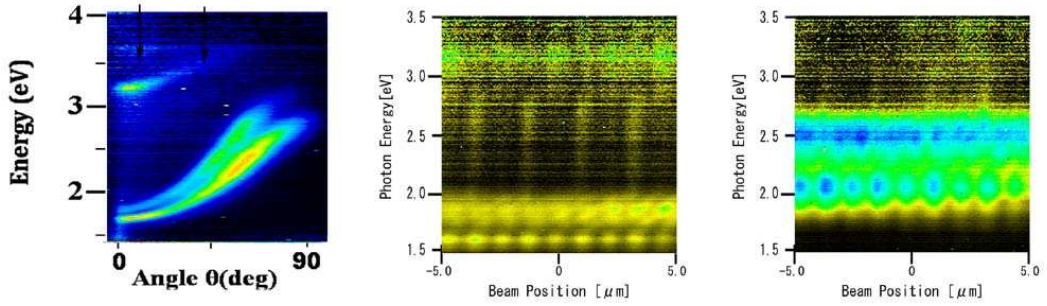

図 4.5: 周期800nm，テラス幅320nm の試料からのラインスキャン像．図 4.2(d) の配置で測定を行った．測定角度は (b)11° ， (c)45° である．

4.3 プラズモニックバンドギャップの表面形状依存性

前節において 1 次元周期構造上に電子線を入射したときに得られる放射角度分解発光スペクトル像はプラズモニック結晶の分散曲線を表すことを示した．本節では 1 次元周期構造の表面形状を変化させたとき，プラズモニックバンドギャップの幅の変化について調べる．

試料は周期 800nm としてテラス幅 D を 200nm から 600nm まで変化させたときのプラズモニックバンドギャップの幅の変化，及びバンドギャップにおける発光強度の電子線入射位置依存性について調べた．

4.3.1 放射角分解発光スペクトルの表面形状依存性

図 4.2(a) に示す配置で 200nm から 600nm までテラス幅を変え，p 偏光で測定した放射角度分解発光スペクトル像を図 4.6 に示す．テラス幅はそれぞれ (a)200nm， (b)240nm，(c)280nm，(d)320nm，(e)360nm，(f)400nm，(g)440nm，(h)480nm，(i)520nm，(j)560nm，(k)600nm である．図 4.6(d) は前節で示した結果と同じものである．図 4.6(c) 中二つの矢印 A，B で示すテラス幅が変化すると二つのバンドギャップ幅も変化する．そのバンドギャップ幅は単調な増加ではなく，テラス幅が変化することで広がったり狭まったりを繰り返していることが見られる．また分散曲線に沿った強度分布は，D=200nm(図 4.6(a)) では放射角度の増加に伴い，高エネルギー側から低エネルギー側にシフトする分散線の強度が強いが，テラス幅が広くなるとその強度は弱まる．D=320nm(図 4.6(d)) では分散線の強度は高エネルギー側から低エネルギー側にシフトする分散線と低エネルギー側から高エネルギー側にシフトする分散線の強度は同じ程度になっている．その後，低エネルギー側から高エネルギー側に変化する分散線の強度が強まり，D=400nm(図 4.6(f)) で，高角度になるに従い，低エネルギー側から高エネルギー側にシフトする分散線の強度が最大になる．その後，D=560nm(図 4.6(i)) でまた二つの強度分布がほぼ等しくなっているのが分かる．

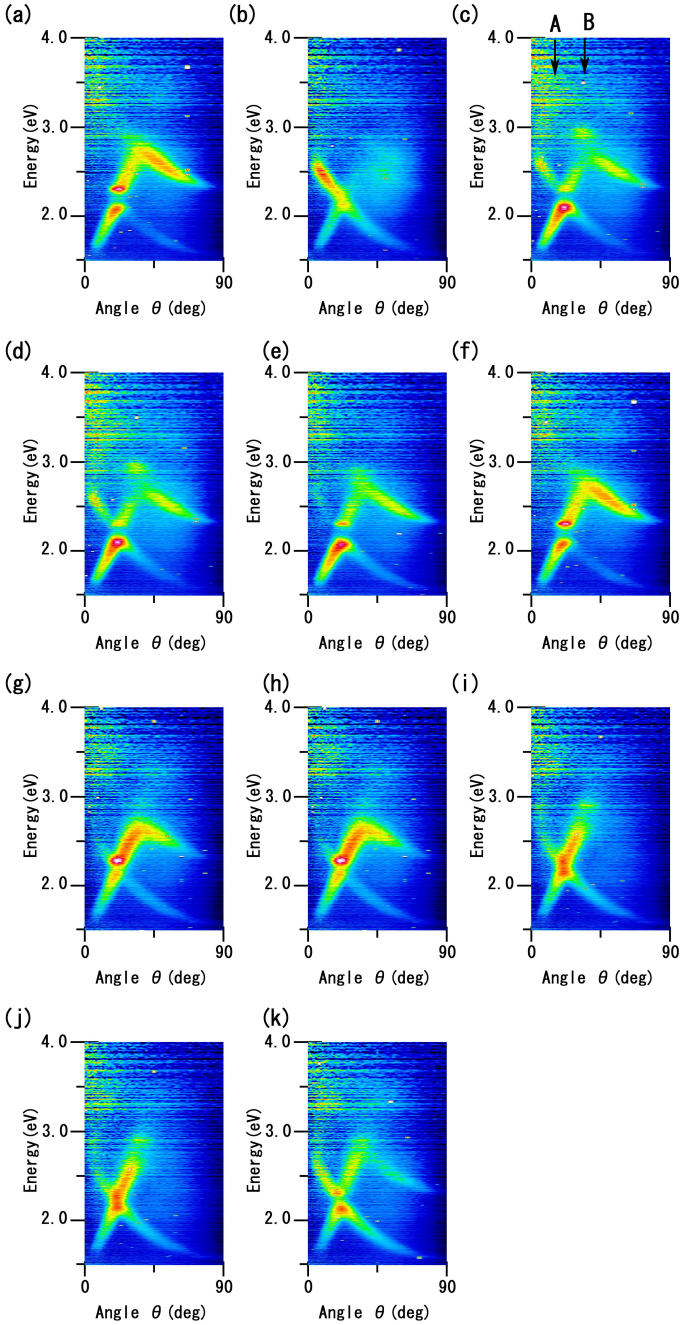

図 4.6: テラス幅 D を変化させたときの周期 800nm の放射角度分解発光スペクトル像．図 4.2(a) の配置で測定を行った．テラス幅はそれぞれ (a)200nm, (b)240nm, (c)280nm, (d)320nm, (e)360nm, (f)400nm, (g)440nm, (h)480nm, (i)520nm, (j)560nm, (k)600nm

4.3.2 バンド端の SPP の電子線入射位置依存性

図 4.6(a) 中の矢印 A に対応する角度方向に放射する光を検出する配置でラインスキャン像を測定した．得られたラインスキャン像を図 4.7 に示す．測定した試料はそれぞれ周期が 800nm で，テラス幅が (a)200nm，(b)240nm，(c)280nm，(d)320nm，(e)360nm，(f)400nm，(g)440nm，(h)480nm，(i)520nm，(j)560nm，(k)600nm である．5 周期分の長さを走査して測定を行った．得られたラインスキャン像を比較すると，バンド端に対応するエネルギーにはテラス幅に関係なく元の周期 P=800nm に対して三分の一の周期で明暗のコントラストが現れている．またその位相はバンドギャップの上端と下端で半位相ずれていることが観察された．

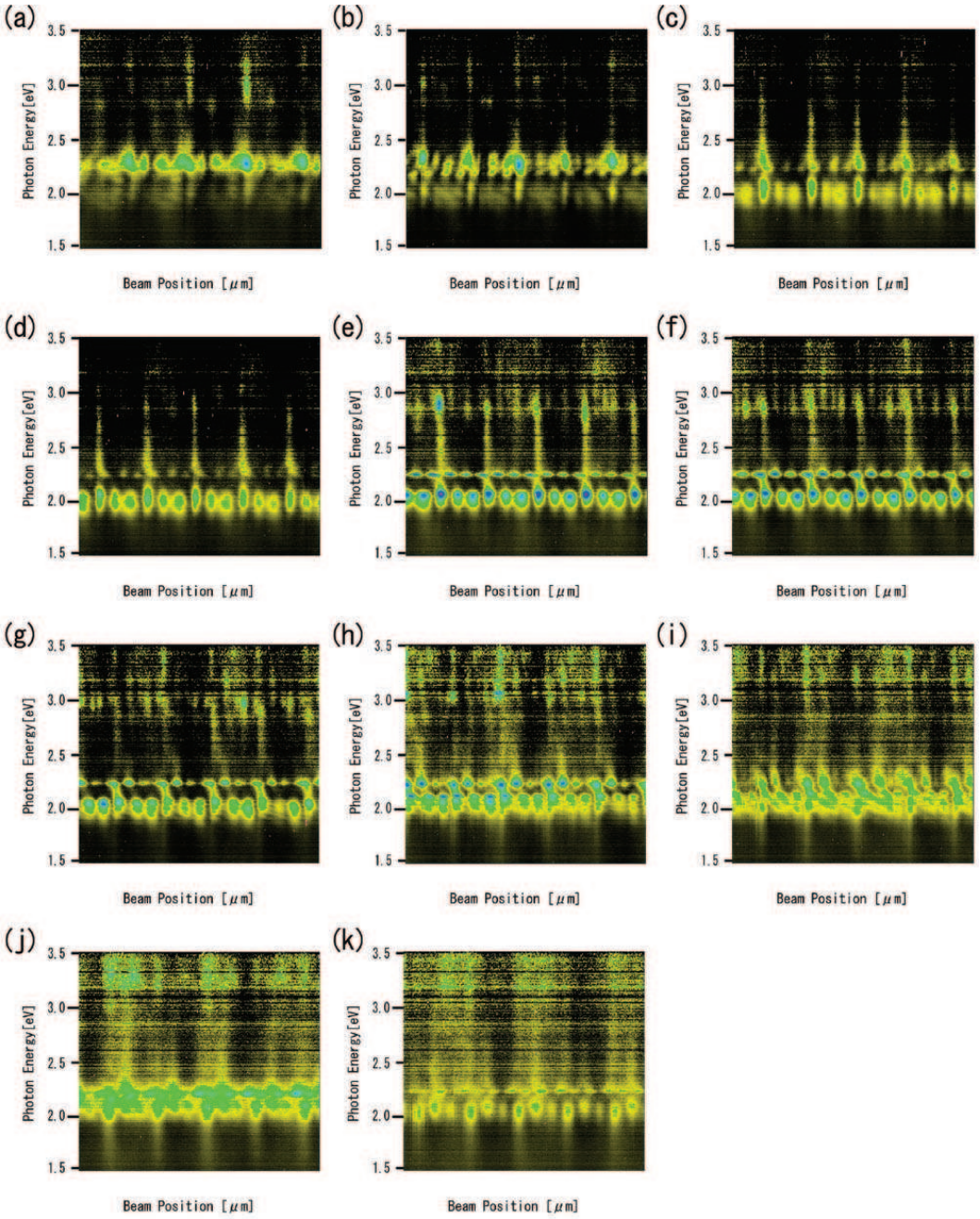

図 4.7: テラス幅 D を変化させたときのラインスキャン像．図 4.2(a) の配置でバンドギャップに対応する放射角度 (図 4.6(c) の矢印 A の位置) に検出方向を固定して測定を行った．テラス幅はそれぞれ (a)200nm，(b)240nm，(c)280nm，(d)320nm，(e)360nm，(f)400nm，(g)440nm，(h)480nm，(i)520nm，(j)560nm，(k)600nm

4.4 考察

本節ではこれまでの実験結果から電子線励起発光顕微法における 1 次元プラズモニック結晶からの発光特性について考察する．

4.4.1 電子線励起発光顕微法による発光過程

これまでの実験により，電子線励起発光顕微法によって SPP の分散曲線を可視化することができることが分かった．また，4.3 節において示したように分散曲線の強度分布はテラス幅によって変化していた．本節では分散曲線の強度変化に対して，SPP バンド端から離れた波数ベクトルを持つ平面波的な SPP モードと，バンドギャップ付近の定在波 SPP モードに分けて考察を行う．

4.4.1.1 平面波的 SPP

第 3 章において，ステップ端における SPP-光変換特性について明らかにした．そこで次のような仮定のもとに周期配列した矩形構造による SPP-光変換の放射角度依存性について調べる．

図 4.8(a) に示すような，x 方向に周期 a で配列している周期構造中を SPP が伝播するとき表面構造により光に変換される．原点 O にある散乱体の部分から放出された光と，原点から r 離れた散乱体の一部から放出された光の間の位相差は,

$$\omega\Delta t - \boldsymbol{k}_{SPP}\cdot\boldsymbol{r} = \boldsymbol{k}_{ph}\cdot\boldsymbol{r} - \boldsymbol{k}_{SPP}\cdot\boldsymbol{r} = (\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP})\cdot\boldsymbol{r} \tag{4.4}$$

と表わされる。ここで,

$$\boldsymbol{r} = x\boldsymbol{a} + y\boldsymbol{b} \tag{4.5}$$

とおく。一つのストライプによる散乱振幅 $f(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP})$ は

$$\begin{aligned} f(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}) &= \int_{-\inf}^{\inf}\int_{-\inf}^{\inf} q(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}, \boldsymbol{r}) \exp\left[i(\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP})\cdot\boldsymbol{r}\right] dxdy \\ &= \int_{-\inf}^{\inf} q(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}, \boldsymbol{r}) \exp\left[\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP})\cdot x\boldsymbol{a}\right] dx \\ &\times \int_{-\inf}^{\inf} \exp\left[\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP})\cdot y\boldsymbol{b}\right] dy \\ &= Q(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}, x)\cdot\delta((\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP})_y \end{aligned} \tag{4.6}$$

と書ける．全散乱振幅は

$$\begin{aligned} \psi(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}) &= \psi_0 \sum_n f(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}) \exp\left[i(\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP})\cdot n\boldsymbol{a}\right] \\ &\psi_0 f(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}) \left[\sum_n \exp(i(\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP})\cdot n\boldsymbol{a})\right] \end{aligned} \tag{4.7}$$

と表わせる。括弧の中の和は,

$$\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP} = m\boldsymbol{a}^* \tag{4.8}$$

のときにピークをもつ。ここで，$\boldsymbol{a}^*$ は $\boldsymbol{a}$ の逆格子ベクトル,m は整数である．

$$\boldsymbol{k}_{ph} - \boldsymbol{k}_{SPP} = \boldsymbol{s} = s_x \boldsymbol{a}^* + s_y \boldsymbol{b}^* \tag{4.9}$$

とおくと，上に書いた (4.6) 式，(4.7) 式は

$$f(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}) = Q(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}) \cdot \delta(s_y) \tag{4.10}$$

$$\psi(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}) = \psi_0 f(\boldsymbol{k}_{ph}, \boldsymbol{k}_{SPP}) \cdot \left[\sum_n \exp(2\pi i n s_x) \right] \tag{4.11}$$

と書き直せる。散乱振幅 ψ をみれば明らかなように，強い干渉が起こるのは，(1):$s_y = 0$, および (2):$s_x = m$ の二つの条件が同時に満たされる場合である。

ここで図 4.2(a) の実験条件において考えると，検出する光の波数ベクトルは

$$\boldsymbol{k}_{ph} = (k_{ph_x}, 0) \tag{4.12}$$

とかけるので，条件 (1) から

$$s_y b^* = k_{ph_y} - k_{SPP_y} = 0 \longrightarrow k_{SPP_y} = 0 \tag{4.13}$$

となり，図 4.2(a) の実験条件において検出される SPP 放射に関与しているのは x 成分のみを持っている SPP であることが分かる (図 4.8(c))．また図 4.2(d) の実験条件においては検出する光の波数ベクトルは

$$\boldsymbol{k}_{ph} = (0, k_{ph_y}) \tag{4.14}$$

となり，条件 (2) から

$$s_x a^* = k_{ph_x} - k_{SPP_x} = m\boldsymbol{a}^* \longrightarrow k_{SPP_x} = m\boldsymbol{a}^* \tag{4.15}$$

となり，図 4.2(d) の実験条件において検出されている SPP 放射に関与する SPP の x 成分は逆格子ベクトルと等しいことが分かる (図 4.8(d))．

図 4.9 に示すように周期 P，テラス幅 D の試料に電子線がステップ端から距離 x だけ離れた位置に入射したとき，電子線入射位置から遷移放射が ψ_{TR} で放射し，同時に SPP も励起する．励起した SPP はステップ端において光と結合する．検出される SPPR の振幅は伝播方向と，ステップ端の上下によって，以下の 4 種類に分けることができる．$-x$ 方向に伝播した SPP がステップ上部で放射する ψ_{UL}， $+x$ 方向に伝播した SPP がステップ上部で放射する ψ_{UR}， $-x$ 方向に伝播した SPP がステップ下部で放射する ψ_{DL}， $+x$ 方向に伝播した SPP がステップ下部で放射する ψ_{DR} である．θ 方向で検出される光の波動関数 Ψ は

$$\begin{aligned}
\Psi =& \psi_{TR} \\
&+ \sum_{n=1} \psi_{DR} \exp\left[i(k_{SPP} - k_{ph}\sin\theta) \cdot ((n+1)P - D - x)\right] / \sqrt{(n+1)P - D - x} \\
&+ \sum_{n=1} \psi_{UR} \exp\left[i(k_{SPP} - k_{ph}\sin\theta) \cdot (nP - x)\right] / \sqrt{nP - x} \\
&+ \sum_{n=0} \psi_{DL} \exp\left[i(k_{SPP} + k_{ph}\sin\theta) \cdot (nP + x)\right] / \sqrt{nP + x} \\
&+ \sum_{n=1} \psi_{UL} \exp\left[i(k_{SPP} + k_{ph}\sin\theta) \cdot (nP + D + x)\right] / \sqrt{nP + D + x}
\end{aligned} \tag{4.16}$$

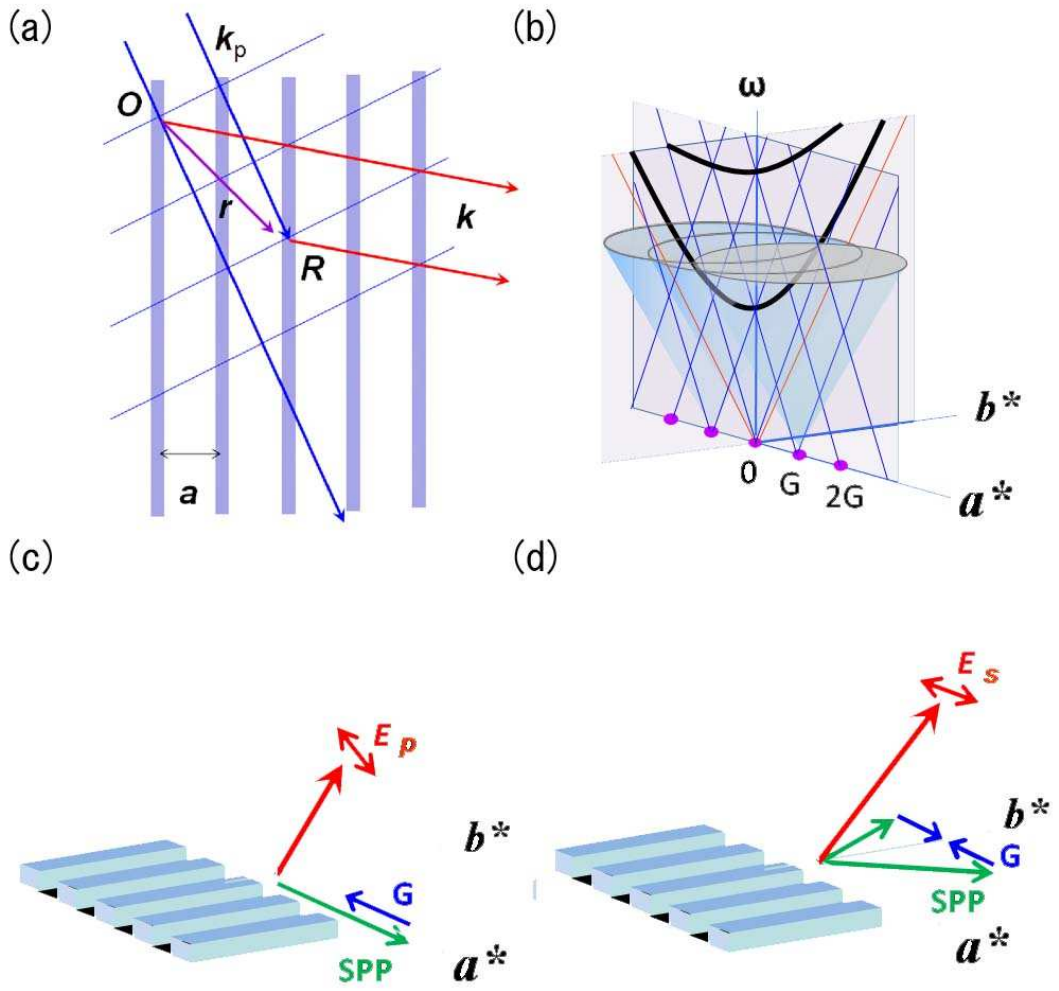

図 4.8: (a) 周期 a で周期的に散乱体が存在する表面に SPP が入射したときの光変換過程, (b)1 次元周期表面の SPP 分散曲線, (c) 周期配列方向に放射する光に関与する SPP, (d) 周期配列方向に垂直方向に放射する関与する SPP

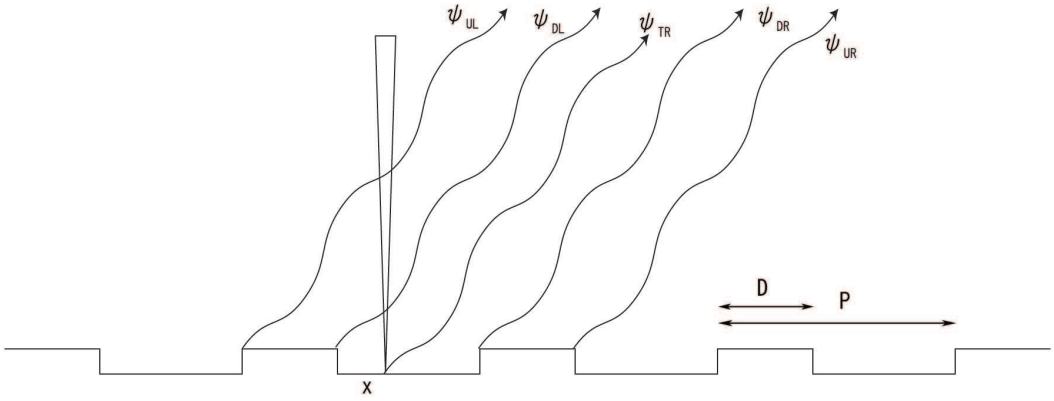

図 4.9: ステップ端から距離 x 離れた位置に電子線が入射したときの放射のモデル

となる．図 4.10 に (4.16) 式を用いて周期 800nm，テラス幅 320nm とし，1 周期分の強度を足し合わせた放射角度分解発光スペクトル像を示す．この計算ではバンドギャップが開く効果を含めていないので，バンドギャップは開いていない．しかしながら，その放射角度分布はプラズモニック結晶内の SPP 分散曲線に対応したコントラストを示している．また同様に図 4.4 の測定条件における電子線入射位置依存性を図 4.11 に示す．得られた結果は実験結果とよい一致を示しており，放射角度分解発光スペクトル像はそれぞれのステップ端からの発光の干渉効果によって現れていることが分かった．

4.4.1.2　バンドギャップ近傍の SPP

SPP 発光の強度は，1)SPP の励起過程と，2) 励起された SPP が伝播する間に起こる光への変換過程の 2 つが関係する。1) は電子が金属表面を通過する過程でのエネルギー損失と関係している．入射電子により誘起された SPP による発光分布が，入射点における LDOS の一部分（PLDOS）に比例することが EELS の理論から最近示された [40,41]．すなわち，電子線の軌道方向に並進対称性をもつ構造では，EELS はその方向に投影した LDOS に比例し，さらに，EEL 過程の一部である放射損失，すなわち CL 強度は，photonic LDOS に比例することが示された．

2) は，入射電子により励起された SPP が，その後伝播していく過程でフォトンを放出する過程である．局所的に見れば平坦なテラス上に入射した電子は入射位置に関わり無く SPP の 2 次元球面波を励起する．光の放射は，この励起された SPP の 2 次元球面波がグレーティング上を伝播するときグレーティングのテラスエッジで起こると考えられる．電子線の照射により遷移放射も発生するので，検出される発光はそれらの重ね合わせになり，干渉効果を考慮する必要がある．

2) の過程だけでは SPP による発光の分散パターンにバンドギャップが生じることを説明できない．バンド端の波数ベクトルをもつ SPP は格子により Bragg 反射され，振幅の大きな反射波を生じる．バンドギャップ内のエネルギーを持つ SPP は，プラズモニック結晶内を伝播するとき短距離で急激に振幅が減少し消えてしまう． したがって，スペクトル像でこのエネルギー領域の発光のコントラストは弱い．

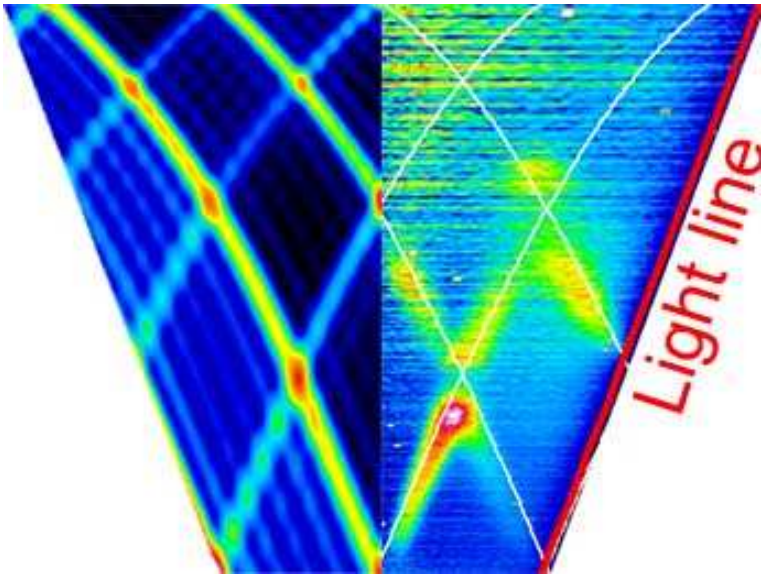

図 4.10: 左)(4.16) 式で計算した周期 800nm，テラス幅 320nm の周期構造上での分散関係，右) 図 4.3 に示した実験結果

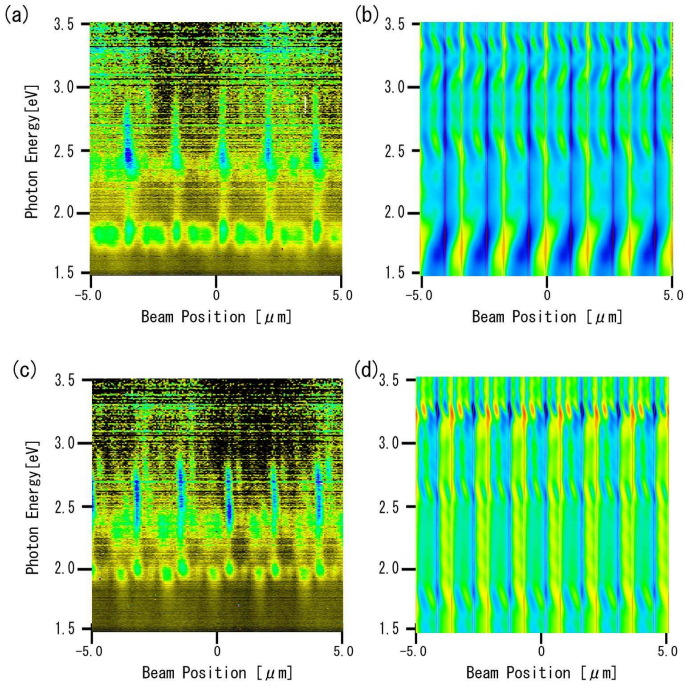

図 4.11: (a) 図 4.4(b) に示した放射角度 11° で測定したラインスキャン像と (b) 同条件で (4.16) 式で計算した放射強度分布．(c) 図 4.4(d) に示した放射角度 11° で測定したラインスキャン像と (d) 同条件で (4.16) 式で計算した放射強度分布

バンド端から離れた，すなわちブリルアンゾーン境界から離れた波数ベクトルを持つ SPP は，格子による反射の影響は小さく，平面波的に格子上を伝播する．したがって，この場合は SPP の励起確率はビーム位置に依らずテラス上で一定である．発光のビーム位置依存性は 2) の過程が重要となる．

4.4.2 バンドギャップ幅

本節では，実験で得られたテラス幅によるバンドギャップ幅の変化について考察を行う．

1 次元の正弦波的な表面におけるプラズモニックバンドギャップの大きさについての理論計算は Barns らによって報告されており [16]，それによると表面形状 $S(x)$ をフーリエ展開した n 次の係数を d_n とするとバンドギャップの幅は

$$\frac{\omega_n^{\pm}}{c} = \sqrt{\left(\frac{\omega_0}{c}\right)(1-(k_{SPP}d_n)^2) \pm \frac{2k_{SPP}^2}{\sqrt{-\varepsilon_1\varepsilon_2}}(k_{SPP}d_n)(1-\frac{7}{2}(k_{SPP}d_n)^2} \tag{4.17}$$

で表すことができる．ここで ε_2 は銀の誘電率であり，ε_1 は誘電体の誘電率で本研究では真空なので 1 である．ω_0 は平坦な表面における波数 k_{SPP} の SPP の振動数である．この式から周期を 800nm として矩形構造における 3 次のバンド端とバンドギャップ幅のエネルギーを計算する．本研究で扱った試料の断面形状を図 4.12(a) に示す．この表面周期構造のフーリエ係数はテラス幅 D によって図 4.12(b) に示すように変化する．本研究で測定観測されたバンドギャップは 3 次のフーリエ係数によって決まるバンドギャップであり，図 4.12 に示したフーリエ係数を用いて計算したバンドギャップ幅とバンド端のエネルギーが図 4.13 の実線である．図 4.13(a) がバンド端のエネルギーを，図 4.13(b) がバンドギャップ幅を表している．図中のプロットが図 4.6 から求めたバンド端とバンドギャップ幅のエネルギーである．得られた結果をみるとそのバンドギャップ幅依存性は理論とよく一致していることが分かる．

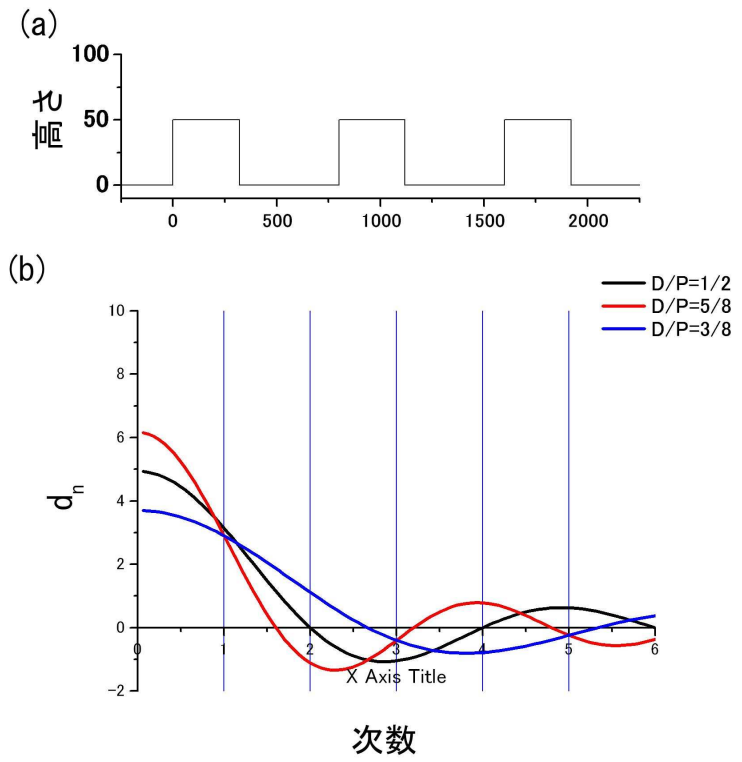

図 4.12: (a) 周期 800nm，テラス幅 320nm の試料の断面形状，(b) テラス幅と周期の比を変えたときのフーリエ係数の変化

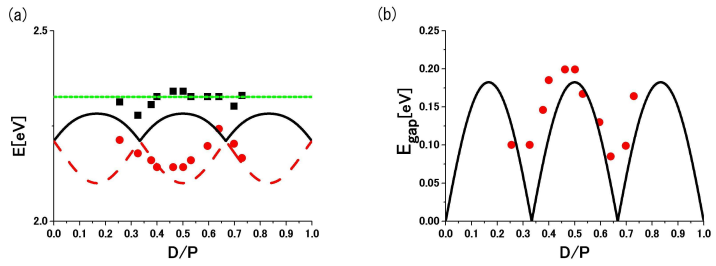

図 4.13: (a) バンドギャップ端のエネルギーのテラス幅依存性．(b) バンドギャップ幅のテラス幅依存性．プロット点が実験結果であり実線が理論曲線を示す

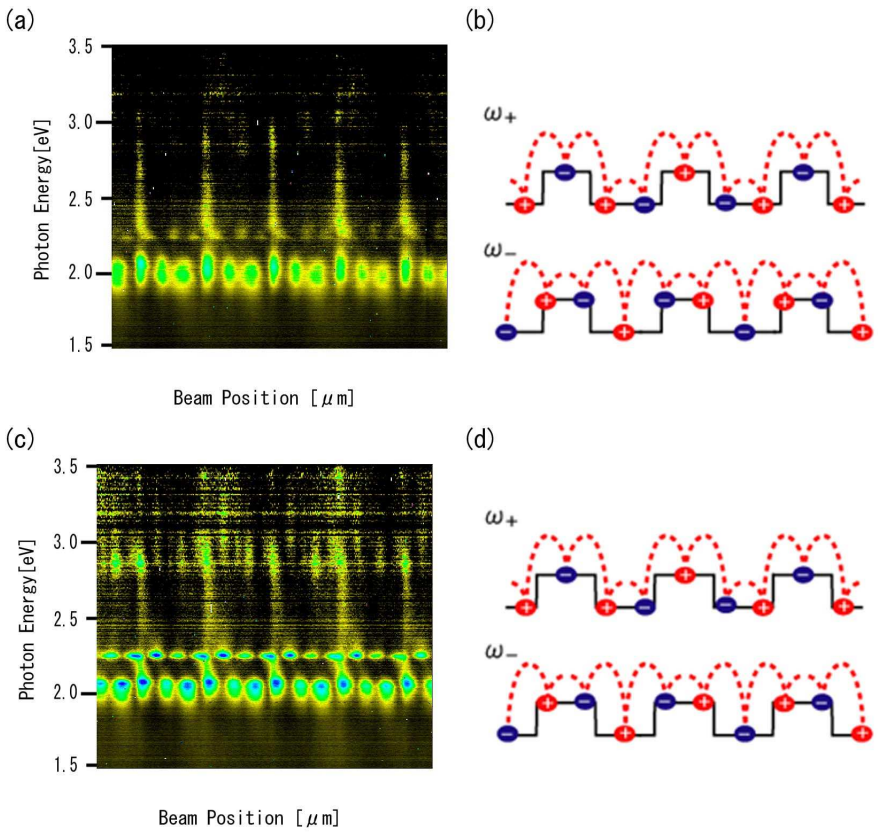

図 4.14: バンドギャップ端の発光強度変化，(a)P=800nm，D=320nm の試料のバンドギャップのラインスキャン像，(b) バンドギャップ端における P=800nm，D=320nm の矩形構造の電場分布モデル，(c)P=800nm，D=400nm の試料のバンドギャップのラインスキャン像，(d) バンドギャップ端における P=800nm，D=400nm の矩形構造の電場分布モデル

4.4.3 バンドギャップにおける放射強度

図 4.7 に示したように，テラス幅によってバンド端のエネルギーを持つ定在波モードの強度に変化が見られた．図 4.14 に D=320nm(a)，D=400nm(c) の二つのテラス幅におけるラインスキャン像を示す．これは図 4.7(d)，(f) と同じものである．二つのラインスキャン像を比較すると，D=320nm では低エネルギー側の ω_- モードが強く，D=400nm では二つのモードの強度に違いは見られない．これは図 4.14(b)，(d) に示すモデルで説明ができる．バンド端では，SPP は伝播せずに定在波として存在する．SPP が光に変換するためには表面のナノ構造，本研究ではステップ端，が必要であり，ステップ端に電場分布の腹の位置が近いほど強く発光すると考えられる．D=320nm の定在波の電場分布を見ると，ω_+ モードでは電場はテラスの中心や溝の中など，比較的平坦な場所に存在しているが，ω_- モードでは，エッジの近傍に電場が集中している．このことから ω_- モードの放射強度が強くなっていると考えられる．また D=400nm で見ると，二つのモードの分布に違いがないことから D=400nm では二つのモードの強度に差が出なかったといえる．

4.5 結論

本章では，銀表面上に 1 次元周期構造を作製し，電子線励起発光顕微法でその性質を調べ以下のことを明らかにした．

(1) 放射角度分解発光スペクトル測定によって試料内の SPP 分散曲線を可視化できることを示した．

(2) 波数空間においてバンドギャップ位置に対応する放射角方向に検出角を固定することで，バンド端の SPP の定在波モードを可視化した．このコントラストはフォトニック LDOS のみでは説明できず，周期構造内の SPP 放射の干渉により説明される．

(3) プラズモニックバンドのギャップ幅が周期構造の周期とテラス幅の比によって変化することを示し，ギャップ幅は表面形状関数のフーリエ成分によって決まることを明らかにした．

(4) バンド端における発光強度は，SPP 定在波モードの腹の位置が周期構造のエッジに合うと強くなることを示した．

第5章　1次元プラズモニック結晶中のCavityによるSPP-光変換

5.1　目的

第4章で述べたように，金属表面に光の波長程度の周期構造を作製することにより，表面構造による散乱によってSPPの分散にバンドギャップが生じる．このようなプラズモニック結晶に挟まれたCavityではバンドギャップ内のエネルギーを持つSPPが全反射を起こすことにより高い発光強度を持つ．このCavityを利用したプラズモン共振レーザー等への応用が期待され様々な研究が行われている [21].

本章では，電子線励起発光顕微法の特徴である高い空間分解能を生かし，Cavity内の内に励起するSPPの空間分布の観察を行った．

5.2節では電子線励起発光顕微法によってどのようにCavityの局在モードが観察できるかについて報告し，5.3節ではCavity幅を変化させたときのCavityモードのエネルギー変化を測定した結果について報告する．これらの結果を元に5.4節でCavity内のSPPの反射の位相について考察を行う．

5.1.1　試料形状

本研究では，プラズモニックバンドギャップ内のエネルギーに現れるCavityモードの観察をするため，プラズモニックバンドギャップは広い必要がある．そこで第4章において測定した周期800nmの1次元プラズモニック結晶において比較的広いバンドギャップ幅を持ったテラス幅D=320nmの試料に焦点を当てた．本研究で用いた試料を図5.1に示す．周期800nm，テラス幅320nmの1次元周期構造中に幅dの線欠陥を作製した．周期構造はCavityの左右に20周期ずつ配置している．欠陥幅dを300nmから640nmまで変化させ，電子線励起発光顕微法でCavity内からの発光の観察を行った．

5.2　Cavityに局在するSPPモード観察

本小節では，Cavityがある1次元プラズモニック結晶からの電子線励起による発光を測定することで，Cavityモードが観察できるかを確認するために，Cavity内に電子線を入射したときの放射角度分布とCavityモードが現れると考えられる波数空間でバンドギャップ位置に対応する角度方向に放射する放射光強度の電子線入射位置依存性を調べる．本実験の試料配置を図5.2に示す．周期配列方向に平行な面内に放射する光を検出する条件であり，この実験配置で放射角度依存性と電子線入射位置依存性について調べた．

周期800nm，テラス幅320nmの矩形構造が配列した1次元プラズモニック結晶中のCavity内に電子線を入射したときの放射角度分解発光スペクトルを波数空間に変換したも

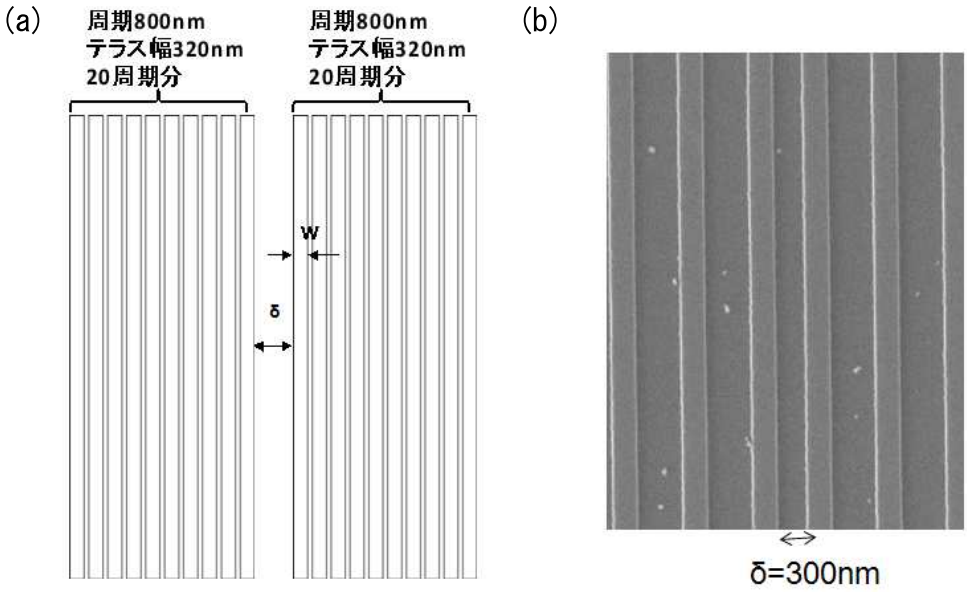

図 5.1: (a) 試料形状の模式図．(b)d=300nm の試料からの SEM 像

のを図 5.3 に示す．図 5.3(a) は Cavity が無い領域で測定した放射角度分解発光スペクトル像である．Cavity 幅 d はそれぞれ (b)300nm, (c)500nm, (d)600nm である．得られた放射角度分解発光スペクトル像において d=300nm(図 5.3(b)) と d=600nm(図 5.3(d)) ではバンドギャップ内に非常に強い発光強度を持った分布が現れているのが観察された．しかしながら d=500nm(図 5.3(c)) ではバンド端の強度が落ちているものの，バンドギャップ内の強度は Cavity が無いとき (図 5.3(a)) とほぼ同じであった．図 5.3(b)，図 5.3(d) を比較すると Cavity 内に現れているモードの角度方向への広がりは一様ではないことが分かる．しかしながらバンドギャップ位置では両者とも非常に強い強度を持っているので，この放射角度方向に検出角度を固定して，ラインスキャン像の測定を行った．

図 5.4 に d=300nm(図 5.3(b)) と d=600nm(図 5.3(d)) で Cavity を含む左右 4 周期の範囲で測定したラインスキャン像を示す．d=300nm のラインスキャン像が図 5.4(b) であり，d=600nm のラインスキャン像が図 5.4(d) である．測定は図 5.4(a)，(c) 図中に示した矢印の放射角度 (θ =27°) で行った．得られたラインスキャン像ではプラズモニック結晶内ではバンドギャップ端に対応するエネルギー位置に SPP 定在波のパターンが現れている．欠陥内に注目すると，d=300nm では一つのピークを持つ分布が，d=600nm では 3 つのピークを持つ分布が現れている．また欠陥近傍に注目すると，欠陥の周囲の周期構造中に欠陥内で観察された Cavity モードと同じエネルギーの所に，欠陥内と同じ間隔の周期的なコントラストが現れている．

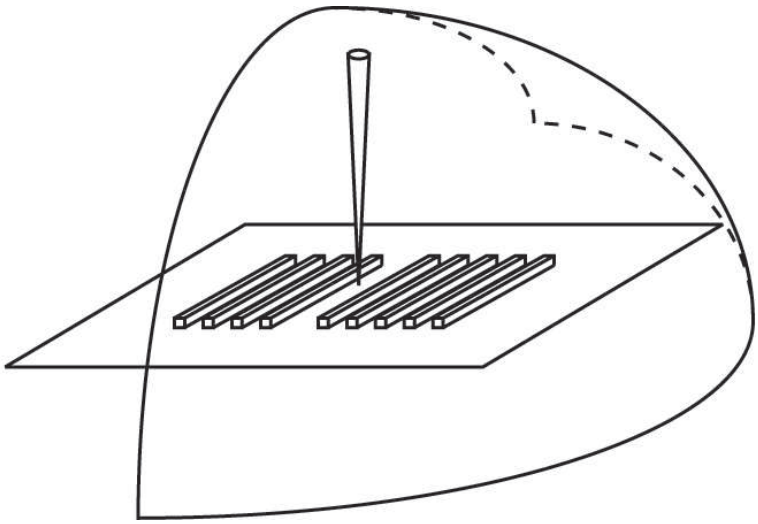

図 5.2: 本章の実験配置．Cavity 内に電子線を入射した状態での放射角度分解発光スペクトル像の測定と特定の放射角度方向におけるラインスキャン像の測定を行った

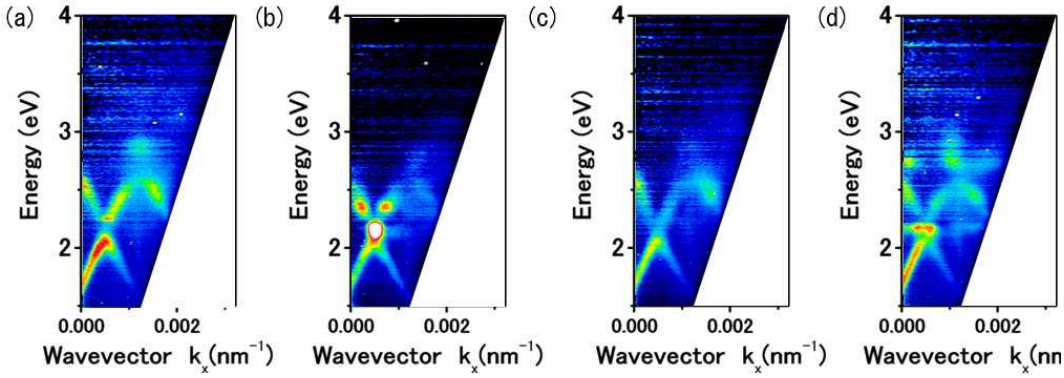

図 5.3: 周期 800nm テラス幅 320nm の周期構造内の Cavity から得られた分散曲線．(a) 欠陥のない領域，(b) 欠陥幅 d=300nm, (c) 欠陥幅 d=500nm, (d) 欠陥幅 d=600nm,

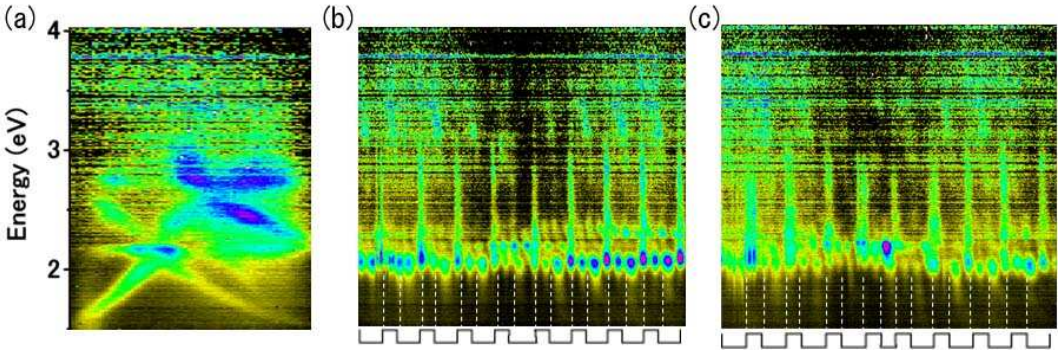

図 5.4: バンドギャップに対応する放射方向で測定したラインスキャン像.(a)P=800nm, D=320nm,d=600nm の Cavity 内で測定した放射角度分解発光スペクトル像．矢印の位置でラインスキャン像を測定した． (b)d=600nm の試料におけるラインスキャン像と (c)d=300nm の試料におけるラインスキャン像．Cavity モードに対応するコントラストが現れている．

5.3 Cavity モードの欠陥幅依存性

前節の結果から電子線励起発光顕微法においてプラズモニック結晶内部の Cavity モードの観察が可能であることが確認できた．そこで本節では Cavity の幅を変えたときに Cavity モードのエネルギーがどのように変化するかを調べた．実験配置は図 5.2 と同様であり，Cavity の幅 d を 450nm から 640nm まで 10nm 刻みで変化させた試料を用いて，バンドギャップ位置に対応する放射角度でラインスキャン像を測定した．

得られたラインスキャン像のうち代表的なものを図 5.5 に示す．図 5.5(a) は Cavity の無い領域で測定したラインスキャン像であり，バンドギャップ端に定在波モードが観察されている．Cavity の幅は (b)450nm, (c)500nm, (d)510nm, (e)550nm, (f)600nm, (g)640nm である．得られたラインスキャン像を見ると d=450nm(b)，d=500nm(c) では Cavity 内にモードは観察されていないが，d=510nm(d) になると矢印で示す位置にモードが現れる．その後 d=550nm(e) から d=640nm(g) と Cavity の幅が広がるに従い，モードの現れるエネルギーが低エネルギー側にシフトしていくのが観察された．そのモードはすべて 3 次の Cavity モードである．本実験で測定した欠陥幅と Cavity モードのエネルギーをプロットしたものが図 5.6 である．図中の実線は図 5.5(g) で観察した放射角度分解発光スペクトル像に見られるバンドギャップ端のエネルギーであり，上が 2.262eV, 下が 2.061eV である．Cavtiy 幅が広がるとモードのエネルギーは低エネルギー側に変化した．

また現れた Cavity モードの強度を見ると，バンドギャップ端に近いエネルギー (図 5.5(d)) ではその強度は弱いが，エネルギーがバンドギャップの中心に近付くにつれて発光強度が強くなっているのが観察された．

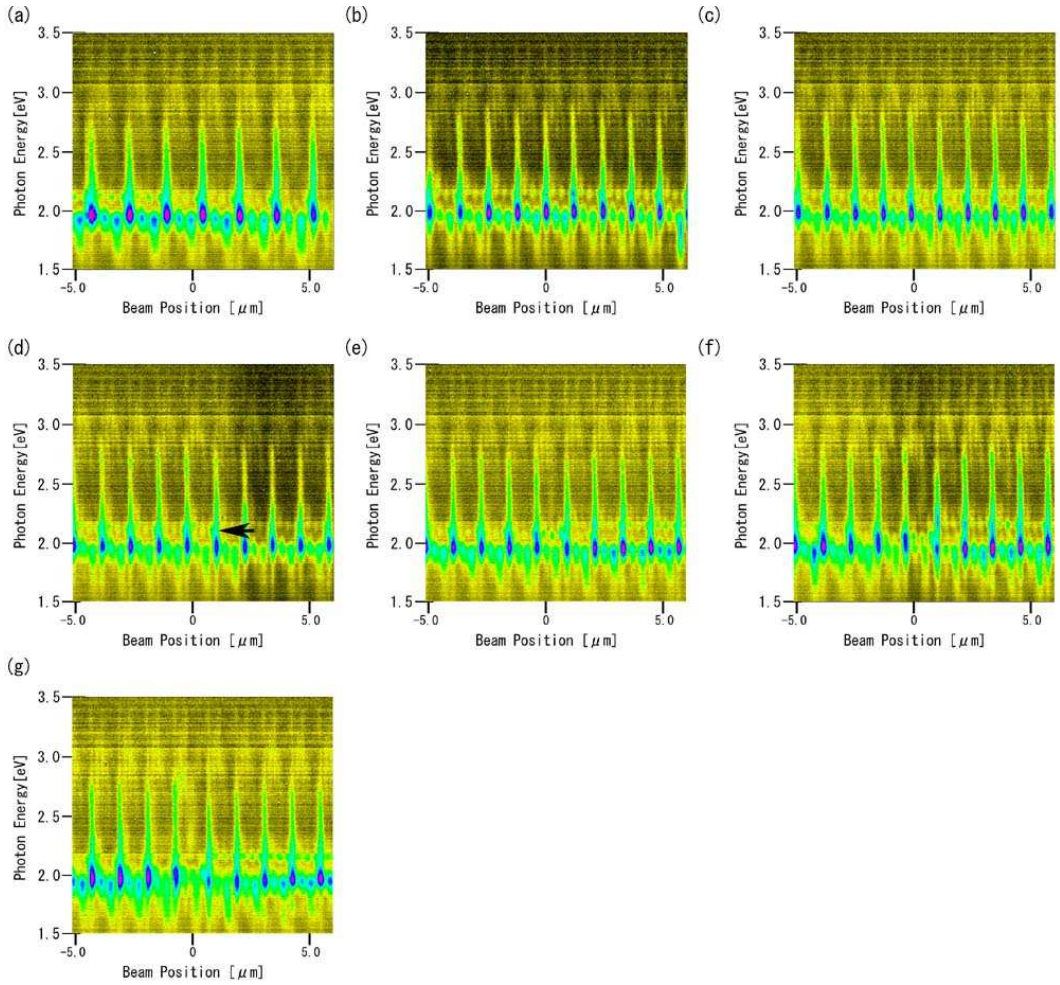

図 5.5: 周期 800nm, テラス幅 320nm のプラズモニック結晶内部の欠陥幅を変化させたときのラインスキャン像の変化.(a)Cavity の無い範囲，(b)450nm, (c)500nm, (d)510nm, (e)550nm, (f)600nm, (g)640nm の幅を持った Cavity におけるラインスキャン像

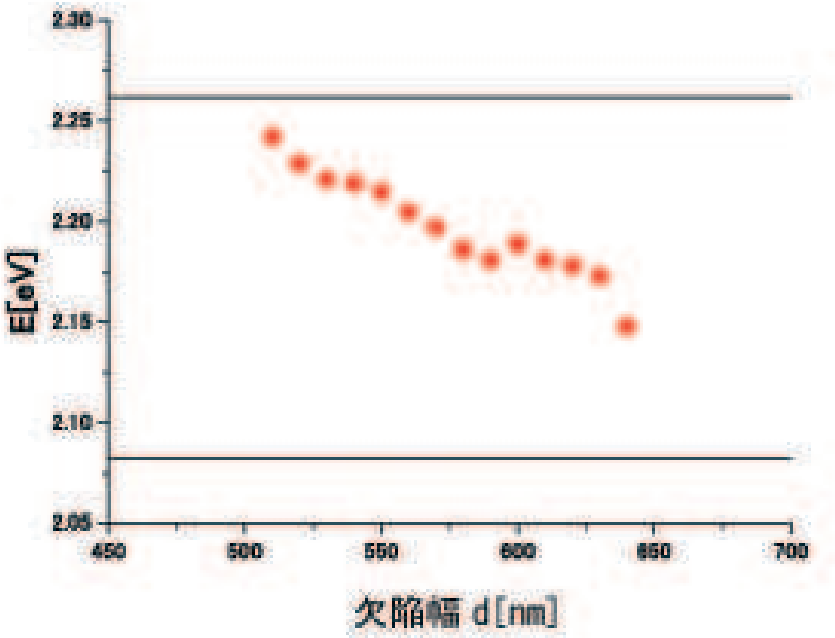

図 5.6: 周期 800nm, テラス幅 320nm のプラズモニック結晶内に作製した Cavity における Cavity モードのエネルギーと欠陥幅の関係

5.4 考察

これまでの結果を元に，Cavity 内に励起した Cavity モードの性質について考察を行う．5.4.1 節では欠陥幅とモードのエネルギーの関係から SPP 反射の位相変化と有効な Cavity 幅について議論する．5.4.2 節では Cavity モードの励起強度がエネルギーによってどのように変化するかについて議論する．5.4.3 節では図 5.4(b)，(d) 中に見られた Cavity の外に現れたフリンジから SPP のプラズモニック結晶内での減衰距離について議論する．

5.4.1 SPP の反射の位相シフト

本節では、二つの 1 次元プラズモニック結晶の距離 d を変えた時の、Cavity モードのエネルギー変化から、Cavity モードの性質について明らかにする．

Cavtiy モードが励起するのは、Cavity 内を伝播する SPP が定在波を作る時である．図 5.7 に示すように、$\psi^0 = e^{i(k_{SPP}x-\omega t)}$ で表される SPP が幅 L の Cavity 内を x が正の方向に伝播する時を考える．Cavity の境界 $(x = 0, L)$ において反射率を R、反射の位相シフト Φ とした時, 反射波 ψ^1 は

$$\psi^1 = Re^{i(k_{SPP}(L-x)+kL+\Phi)+\omega t} \tag{5.1}$$

と書くことができる．この反射波 ψ^1 は x=0 の境界で同様に反射され,

$$\psi^2 = R^2 e^{i(k_{SPP}x+2k_{SPP}L+2\Phi)+\omega t} \tag{5.2}$$

と表せ，x が正方向に伝播する．同様に考えると Cavity 内で n 回反射した波は

$$\psi^n = \begin{cases} R^n e^{i(k_{SPP}x+nkL+n\Phi)} & (n = even) \\ R^n e^{i(k_{SPP}(L-x)+nkL+n\Phi)} & (n = odd) \end{cases} \tag{5.3}$$

となる．ωt の項は共通であるので省略した．よって Cavity 内に存在する波の総和は

$$\begin{aligned} \psi_{tot} &= \sum_i \psi^i \\ &= \left\{ e^{ik_{SPP}x} + Re^{-i(k_{SPP}x-(2k_{SPP}L+\Phi))} \right\} \left\{ 1 + R^2 e^{i(2k_{SPP}L+2\Phi)} + R^4 e^{i2(2k_{SPP}L+2\Phi)} + \cdots \right\} \end{aligned} \tag{5.4}$$

となり,

$$2k_{SPP} \cdot L + 2\Phi = 2n\pi \tag{5.5}$$

を満たすとき Cavity 内に定在波が作られ，振幅が最大となる．(5.5) 式を満たすとき、(5.4) 式は

$$\begin{aligned} \psi_{tot} &= \left\{ e^{ik_{SPP}x} + Re^{-i(k_{SPP}x-(2k_{SPP}L+\Phi))} \right\} \left\{ 1 + R^2 + R^4 + \cdots \right\} \\ &= \left\{ e^{ik_{SPP}x} + Re^{-i(kx-(2k_{SPP}L+\Phi))} \right\} \frac{1}{1-R^2} \end{aligned} \tag{5.6}$$

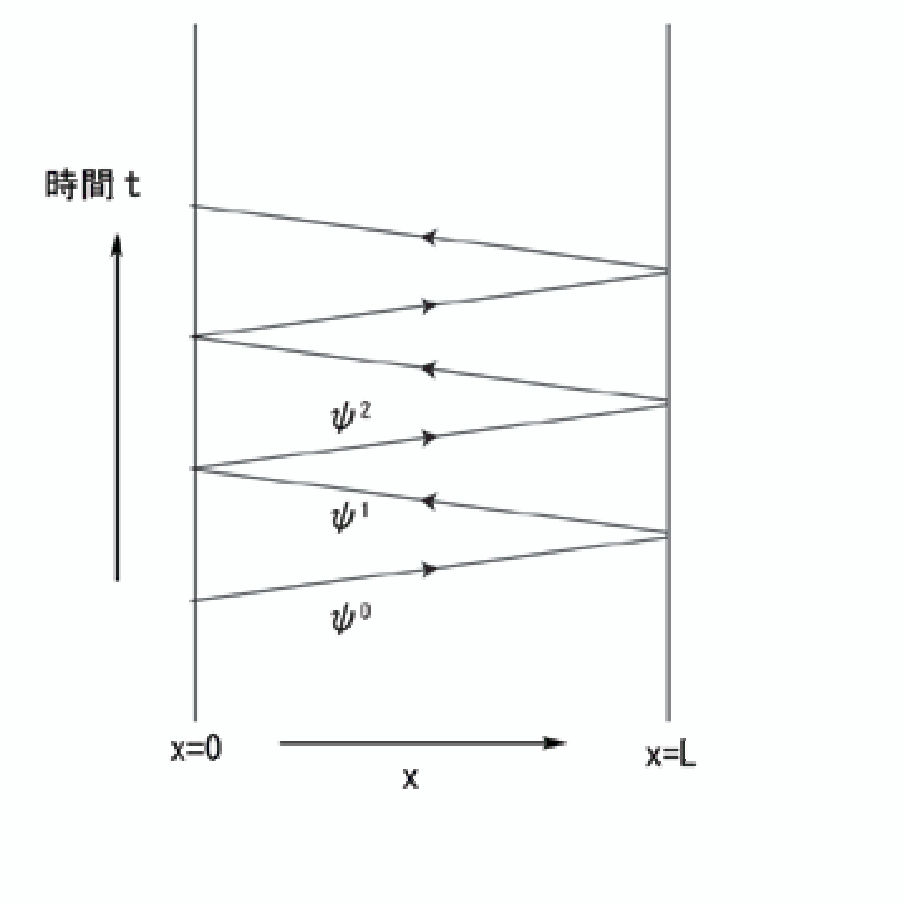

図 5.7: Cavity 内を伝播する SPP は境界 $(x = 0, L)$ で反射される．

となる．単純化するために $\frac{1}{1-R^2}$ の項を無視し，反射率 R=1 とすると

$$
\begin{aligned}
\psi_{tot} &= e^{ik_{SPP}x} + e^{-i(k_{SPP}x-(2kL+\Phi))} \\
&= e^{i(kL+\frac{\Phi}{2})}\left[e^{i(kx-(k_{SPP}L+\frac{\Phi}{2}))} + e^{-i(k_{SPP}x-(k_{SPP}L+\frac{\Phi}{2}))}\right] \\
&\propto \cos\left\{k_{SPP}x - (k_{SPP}L + \frac{\Phi}{2})\right\} = \cos\left\{k_{SPP}(x - \frac{L}{2}) - \frac{n}{2}\pi\right\} \\
&= \begin{cases} \cos k_{SPP}(x - \frac{L}{2}) & (n = even) \\ \sin k_{SPP}(x - \frac{L}{2}) & (n = odd) \end{cases}
\end{aligned}
\tag{5.7}
$$

となる．これは、n が奇数ならば、励起する Cavity モードは反対称モード、n が偶数ならば対称モードとなることを意味する．

$kL = n\pi$ かつ $\Phi = 0$ のとき壁が自由端となる定在波が形成され，$kL = n\pi$ かつ $\Phi = \pm\pi$ のとき壁が固定端となる定在波が形成される．これらの低次の定在波を図5.8 に示す．$kL = n\pi$ かつ $\Phi = 0$ のとき，自由端をもつ定在波の対称性は n の偶奇によって交互に変わり，$n = 1$ のモード (o1) と $n = 3$ のモード (o3) は反対称，$n = 2$ のモード (o2) と $n = 4$ のモード (o4) は対称モードになる．固定端を持つ定在波についても同様である．

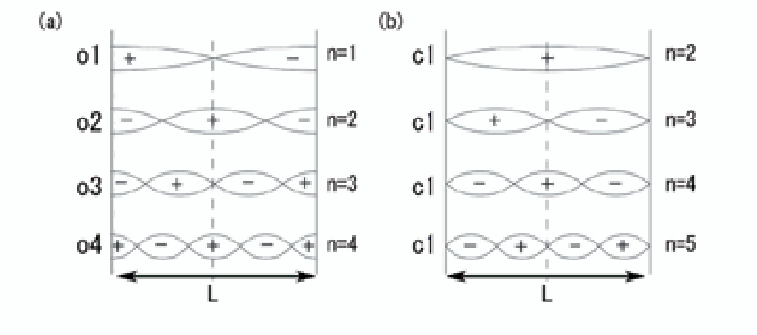

図 5.8: Cavity 内に励起する定在波モードのモデル．(a) 自由端 ($\Phi = 0$) の場合．(b) 固定端 ($\Phi = \pi$) の場合. 対称モード反対称モードが交互に現れる

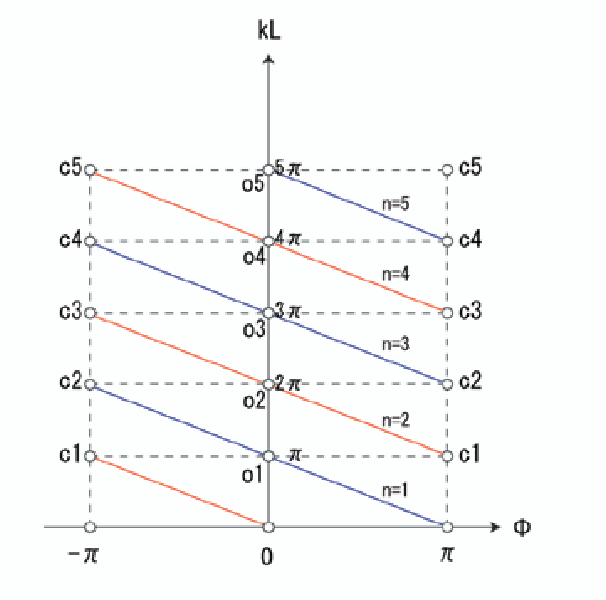

図 5.9: kL と位相シフト Φ の関係.

壁における反射の位相シフト Φ が 0 と $\pm\pi$ から異なる場合を考える．定在波が形成されるためには，(5.5) 式から

$$kL = n\pi - \Phi \tag{5.8}$$

が成り立つ必要がある．kL は図 5.9 に示すように Φ の変化に対して直線的に変わる．n の偶奇によって交互に関数の対称性が変わるのを赤 (対称モード) と青 (反対称モード) で示した．kL の一つの値に対して $-\pi \leq \Phi \leq \pi$ の範囲で必ず対称モードと反対称モードが一つずつ存在する．Φ=0 では図 5.8(a) に示した自由端をもつ定在波だけが現れ，$\Phi = \pm\pi$ では，図 5.8 に示した固定端をもつ定在波だけが現れる．それ以外の Φ の値では，壁の位置で有限の振幅をもつ定在波が形成される．

(5.5) 式から，有効的な Cavity 幅 L は

$$L = \frac{n\pi - \Phi}{k_{SPP}} \tag{5.9}$$

となる．以下で，(5.9) 式から，位相シフト Φ を固定した場合と，位相シフトがエネルギーによって変化する場合に分けて，実験で指定した欠陥幅 d から実効的な Cavity 幅 L がどのように決まるのかについて議論をする．Cavity 内を伝播する SPP の波数 k については平坦な表面における SPP の波数を用いて解析を行う．

5.4.1.1 位相シフトが固定している場合

Cavity とプラズモニック結晶の境界において，SPP の反射の位相シフト Φ がエネルギーによらず一定である場合を考える．(5.9) 式を用いて，反射の位相シフト $\Phi = 0, \pm\pi$ として計算した有効 Cavity 幅 L と Cavity モードのエネルギーを図 5.10 に示す．横軸が有効 Cavity 幅であり，縦軸がエネルギーとなっている．モードの次数 n は 1 から 5 まで示した．$\Phi = 0$ と $\Phi = \pm\pi$ の線は (5.9) 式から分かるように重なっている．図中のプロットは実験で得られた Cavity モードのエネルギーを横軸に有効 Cavity 幅 $L = d$ としてプロットしたものである．実験結果と計算結果を比較するとその変化の仕方が異なっていることが分かる．有効 Cavity 幅がどのようになっているかを見るために，図 5.11 に図 5.4(b) に示した d=600nm の試料で測定したラインスキャン像の拡大図を示す．図中白の点線で示すのがテラスのステップ位置である．この試料において現れた Cavity モードのエネルギーは E=2.173eV であった．現れたパターンは, 中心に節をもち，矢印で示す位置に腹をもつ定在波モードであることが分かる．これに対応するのは $\Phi = \pi$ で $n = 5$ のモード (c4) である．Cavity モードが現れたエネルギーにおける平坦な表面における SPP の波数は $1.847\times10^{-3}\mathrm{nm}^{-1}$ である．これを (5.9) 式に代入すると得られる有効 Cavity 幅 L=1074nm となる．この幅を示したのが図中の赤線であり，予想される定在波の分布を図下部に示す．しかし，実験で得られた空間分布と予想される定在波パターンにはずれが生じていることが明らかである．

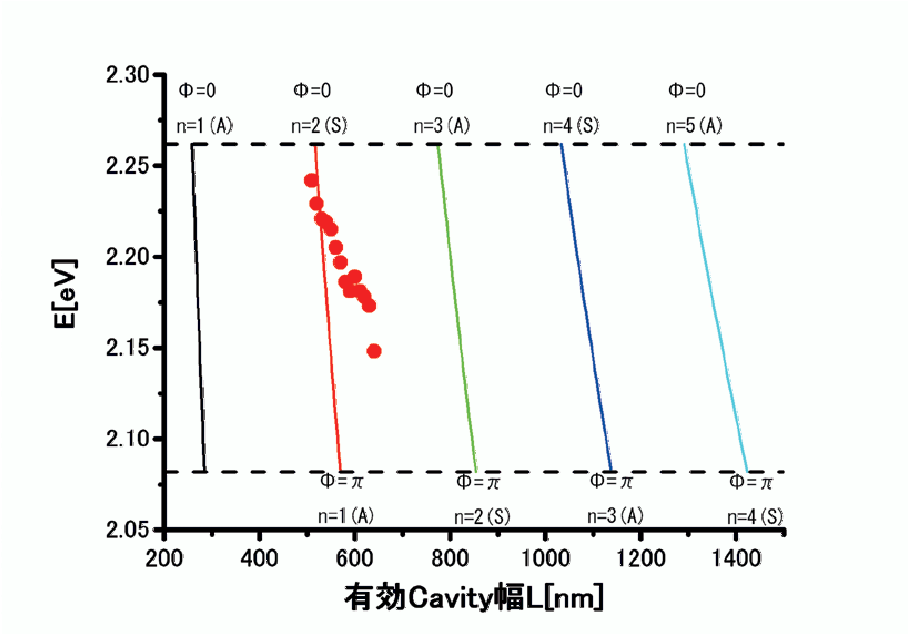

図 5.10: SPP の反射の位相シフト Φ を固定した時の有効 Cavity 幅 L と Cavity モードが現れるエネルギーの関係．Φ が 0 のときと $\pm\pi$ の時は重なっている．

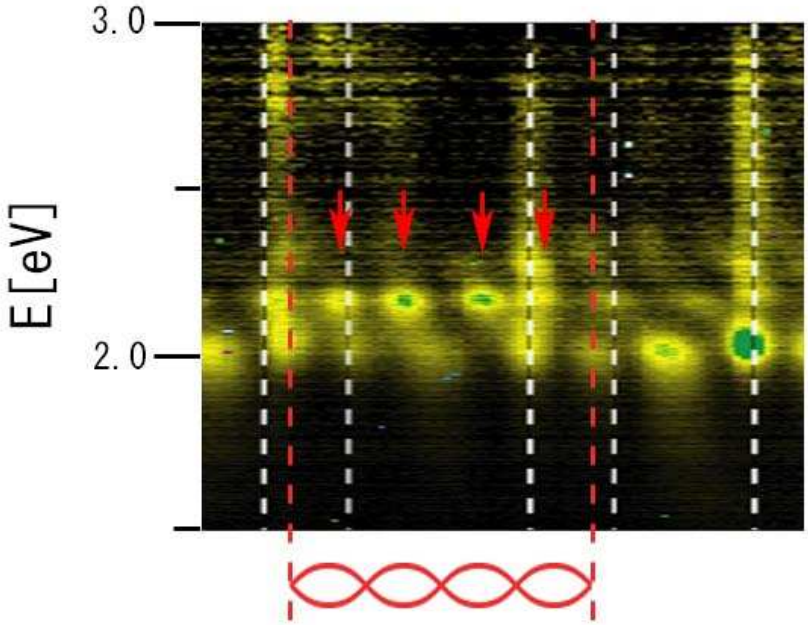

図 5.11: 図 5.4(b) に示した d=600nm の試料で測定したラインスキャン像を拡大したもの．白の点線がテラスのステップ位置を表す．赤の点線は $\Phi = \pi$,$n = 5$ とした場合に (5.9) 式から求まる有効 Cavity 幅 L である．

5.4.1.2 位相シフトがエネルギーによって変化する場合

バンドギャップ内の反射の位相シフトに対しては Weeber らが，SPP 定在波が現れるバンド端において，反射の位相 Φ は ω_+(固定端) では $\pm\pi$ に，ω_-(開放端) では 0 になり，その間のエネルギーでは連続的な変化をするという仮説を立てている [21]. 第 4 章の図 4.14 に示すようにバンド端に現れる定在波モードは上下で位相が π だけずれた形で現れる. 図 5.12(a) に示すように，バンド端の定在波モードと Cavity 内の Cavity モードの連続性を考えるならば，有効的な Cavity 幅は $L = d + D$ となる．また Cavity 内での反射の位相シフトは, 高エネルギー側では節でバンド端の定在波モードと繋がっているので $\Phi = \pm\pi$, 低エネルギー側では，バンド端の定在波モードと腹で繋がっているので $\Phi = 0$ となり，図 5.12(b) にバンドギャップ内で反射の位相シフトが線形に変わるとして計算した有効 Cavity 幅 L と Cavity モードのエネルギーの関係を示す．高エネルギーから低エネルギーになるに従い，反射の位相シフト Φ が π から 0 への変化を点線で，$-\pi$ から 0 への変化を実線で示す．図中のプロットは実験で得られた Cavity モードのエネルギーを有効 Cavity 幅 $L = d + D$(320nm) としてプロットしたものである．実験結果と計算のエネルギー変化を比較すると，Cavity 幅によるエネルギー変化は Φ が $-\pi$ から 0 に変化するとした場合の n=3 の線とよく一致している．図 5.13(a) に n=3 のときに，反射の位相シフトが-π から 0 と変化する場合に現れる Cavity 内での定在モードの強度分布を示す．横軸が位置であり，縦軸にエネルギーを取っている．得られた強度分布は中心に節がある分布を取っていることが分かる．図 5.11 に示した d=600nm の試料で見られた Cavity モードのエネルギーにおけるラインプロファイルを図 5.13(b) に，n=3 の反対称モード (-π から 0) における E=2.173eV のプロファイルを図 5.13(c) に示す．二つのプロファイルを比較するとよく一致している．

今回，位相シフト Φ を固定した場合と，エネルギーによって線形に変化する場合に分けて実験結果の解析を行った．二つの解析結果から，

(1) SPP-Cavity において有効的な Cavity 幅はテラスの中心から中心までである．

(2) バンドギャップ内のエネルギーでは反射の位相シフトがあり，その変化は高エネルギー側から低エネルギー側になるに従い $-\pi$ から 0 となっている

となることが予想される．

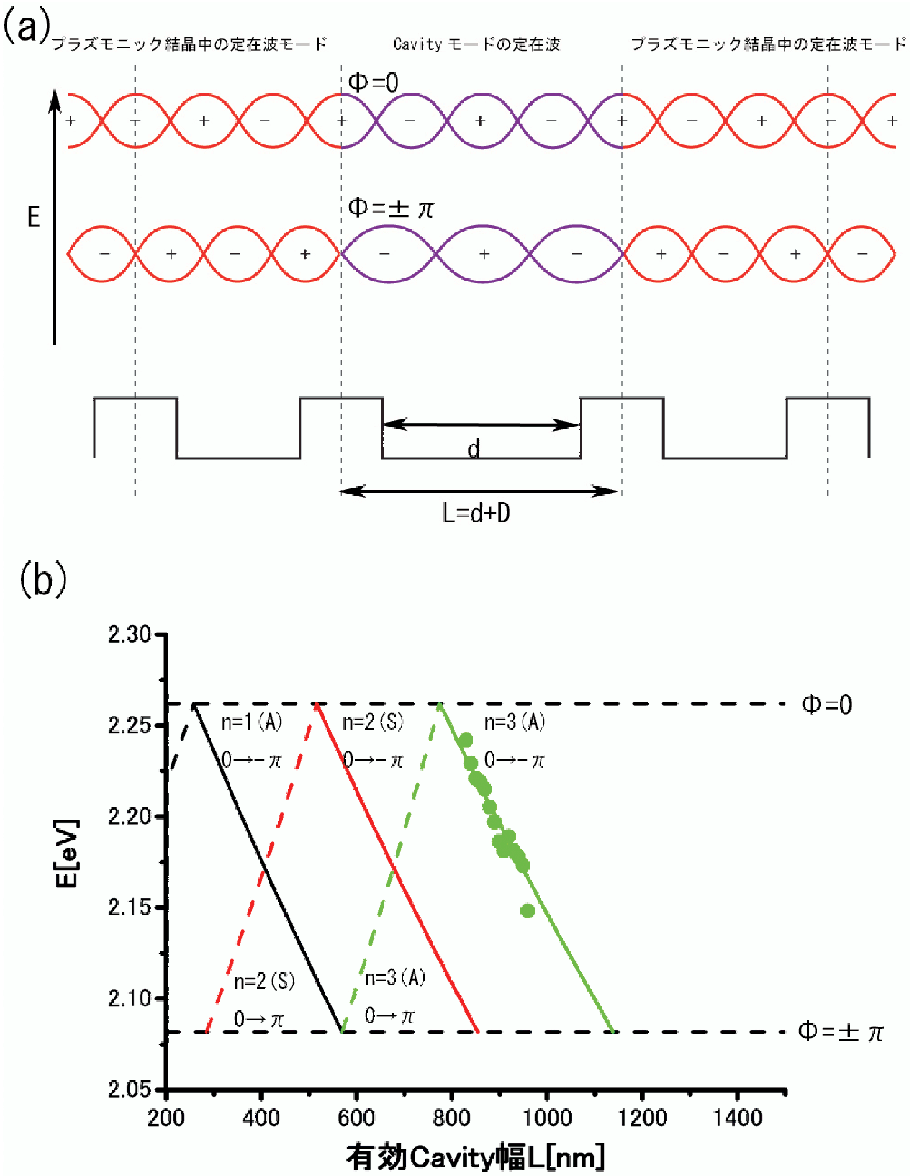

図 5.12: 反射の位相シフトを考慮した Cavity モードの変化．(a) プラズモニック結晶中の定在波と Cavity モードの関係のモデル図．(b) 位相変化を考慮した Ciavty モードと Cavity 幅の関係．高エネルギー側から低エネルギー側にかけて，点線が 0 から π, 実線が 0 から $-\pi$ の変化を表す．

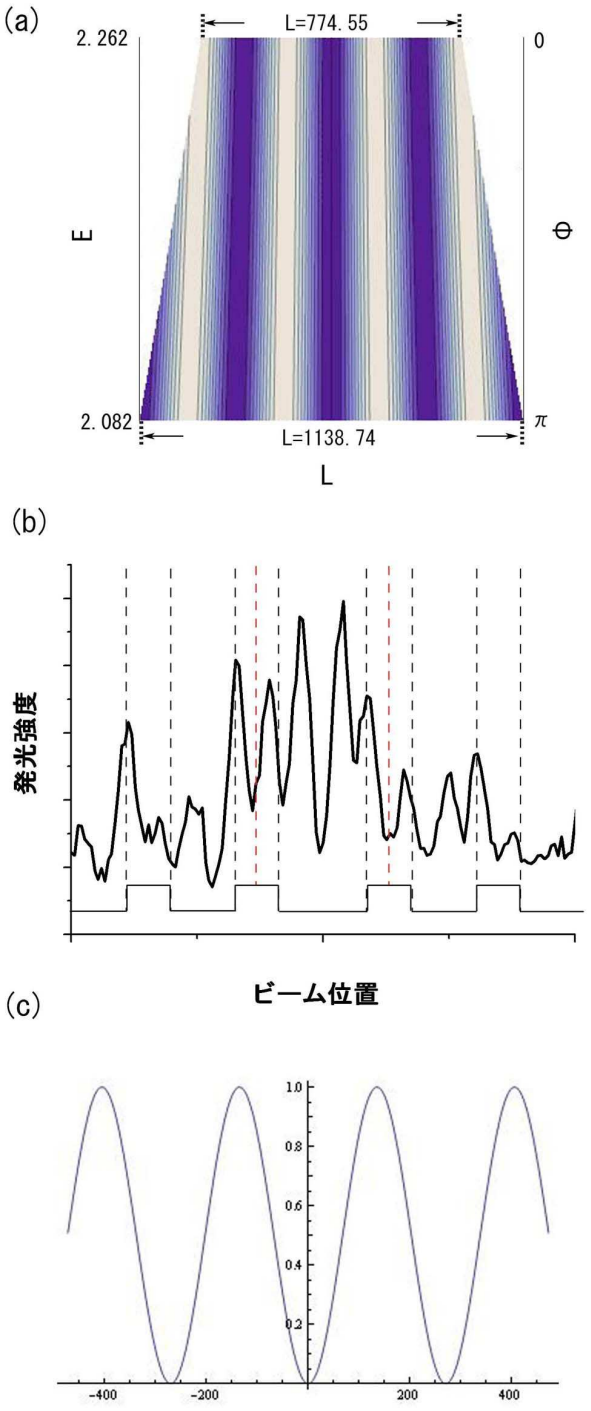

図 5.13: (a) 位相シフトがエネルギーによって変化することを考慮した時の Cavity 内に励起する SPP 定在波の空間分布．(b)d=600nm の試料で測定したラインスキャン像の E=2.173eV における Cavity 周辺のラインプロファイル．(b)(a) の E=2.173eV における SPP 定在波の空間分布.

5.4.2 Cavity モードの強度変化

本小節では，Cavity モードの強度変化について考察を行う．Cavity の強度はプラズモニック結晶内における強度と Cavity 内での強度の比較をする必要がある．そのために増強度 η を用いる．本研究では η は

$$\eta = \frac{\int_L \boldsymbol{E}^2_{Cavity}(x)dx}{\int_L \boldsymbol{E}^2_{Crystal}(x)dx} \tag{5.10}$$

で定義している．ここで L は有効的な Cavity の幅であり，$\boldsymbol{E}_{Cavity}(x)$，$\boldsymbol{E}_{Crystal}(x)$ は Cavity モードのエネルギーにおける電場強度を表している．そのため $\boldsymbol{E}^2$ は検出された光の強度に対応する．プラズモニック結晶中の発光強度に電子線入射位置依存性があるので，図 5.5(h) における 1 周期分の発光強度の平均値を $\boldsymbol{E}^2_{Crystal}(x)$ とた．図 5.4(c) に示した，d=300nm の試料において測定したラインスキャン像からバンドギャップ内の増強度 η のエネルギー依存性を求めたのが図 5.14(a) である．その増強度は最大で 3.0 になっている．また図 5.6 に示した Cavity 幅毎のピークエネルギーにおける増強度 η の変化を図 5.14(b) に示す．横軸にエネルギー E[eV], 縦軸に増強度 η をプロットしている．図中の二つの直線はバンドギャップ端のエネルギー (E_{bottom}=2.082eV,E_{top}=2.261eV) である．得られたプロットをみると，バンドギャップ端に近いエネルギーに励起した Cavity モードの増強度は中心に近いものより小さくなっている．これは，バンド端に近いエネルギーでは，Cavity 内に励起した SPP の閉じ込めが弱くプラズモニック結晶内に伝播して減衰してしまうため，増強度が小さくなっていると考えられる．

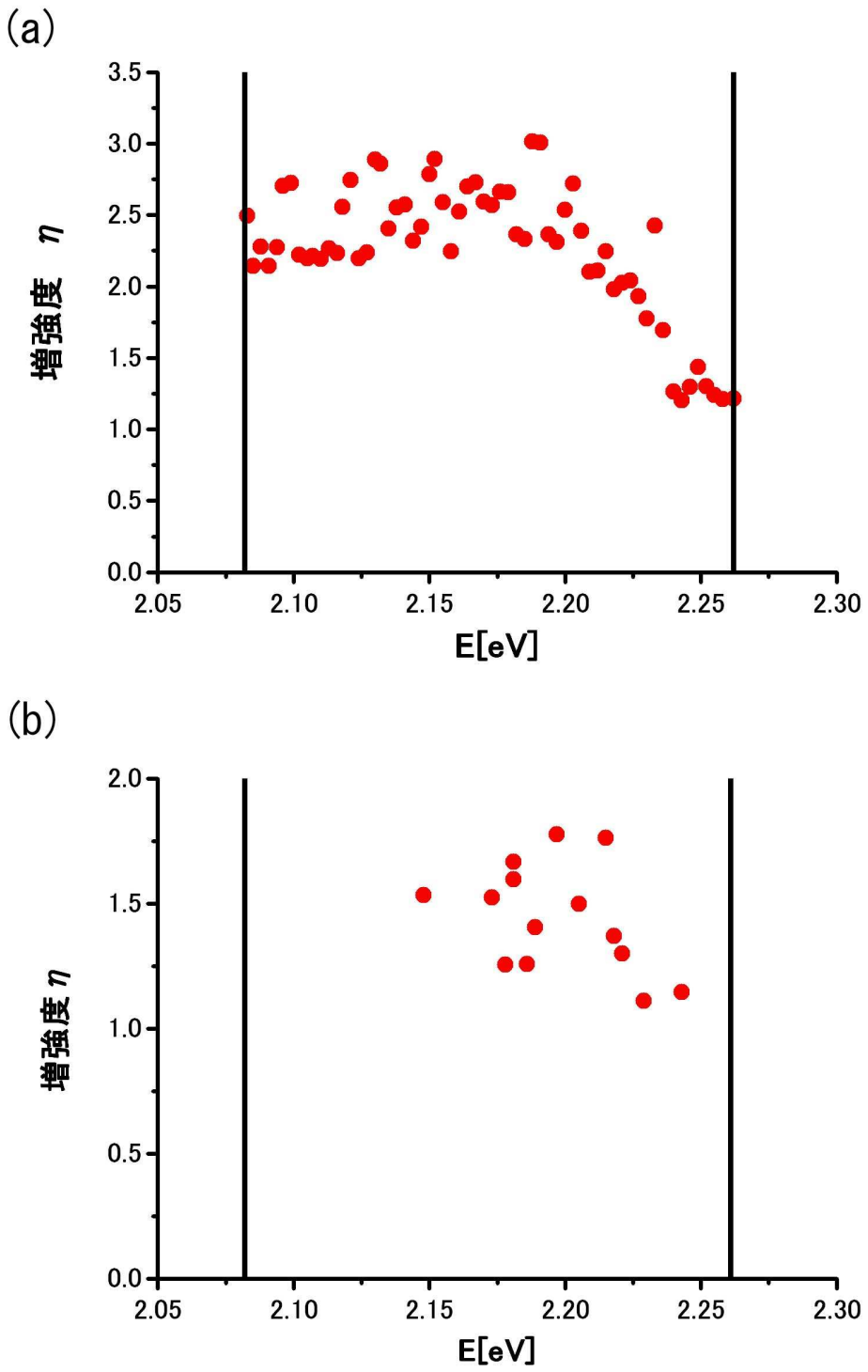

図 5.14: Cavity モードのエネルギーと増強度．(a)d=300nm の試料におけるバンドギャップ内の増強度．(b)d を変えた時のピークエネルギーによる増強度の変化．バンド端に近付くと増強度が低下しているのが分かる

5.4.3 バンドギャップ内の SPP 伝播距離

図 5.4 において Cavity の外側であるプラズモニック結晶内にも Cavity モードのエネルギーの位置に発光パターンが現れいるのが観察された．本小節ではこの発光パターンに対して簡単なモデルを示して，SPP の減衰距離を求める．図 5.15 に本研究で用いたモデルを示す．電子線励起発光顕微法では，電子線入射位置を中心に SPP が球面波として励起し，減衰しながら伝播する．もし図 5.15(a) に示すように電子線入射位置から Cavity までの距離が減衰長よりも短ければ，励起された SPP は Cavity 内にまで伝播し，Cavity 内で多重反射を起こし Cavity モードは観察されることになる．しかしながら図 5.15(b) に示すように減衰長よりも遠い位置で励起された SPP は Cavity 内まで到達することは出来ず Cavtiy モードの光は観察されない．このことからプラズモニック結晶内に広がった Cavity モードの発光パターンから減衰距離を求めることが可能である．図 5.4(b) に示した d=600nm のラインスキャン像では Cavity の外側に伸びた発光パターンの長さは E=2.173eV では，1.7μm であったことからプラズモニック結晶内における減衰距離は 1.7μm であると考えられる．平坦な表面における同じエネルギーの SPP の減衰長は理論計算により 17μm であることから 1/10 程度まで減衰距離が短くなっていることになる．これはプラズモニック結晶内においてこのエネルギーの SPP はバンドギャップ内に存在するためであると考えられる．

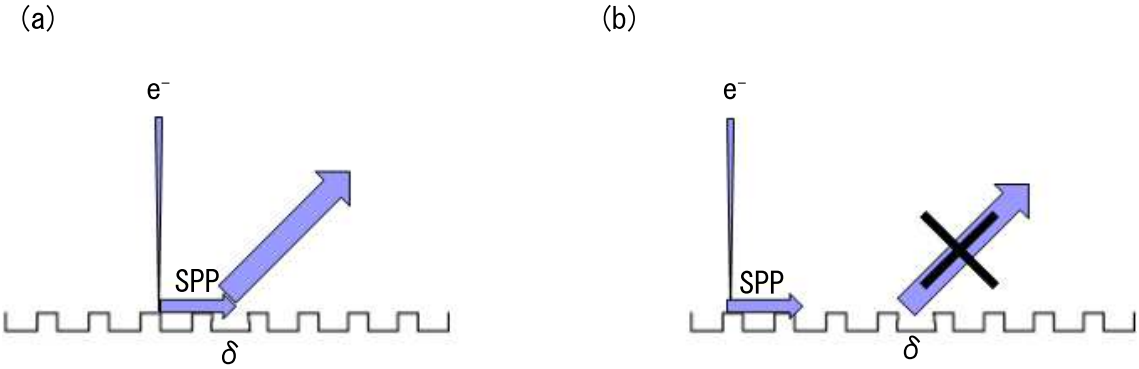

図 5.15: Cavity の外側に伸びたフリンジのモデル．(a) 電子線入射位置から Cavity までの距離が減衰距離より短い場合．このとき Cavity モードは観察される．(b) 電子線入射位置から Cavity までの距離が減衰距離より長い場合．SPP は Cavity に到達できず Cavity モードは観察されない.

5.5 結論

本章では，1 次元プラズモニック結晶中の Cavity に励起する局在モードを電子線励起発光顕微法を用いて観察し，以下のことを明らかにした．

(1) 電子線励起発光顕微法を用いることで Cavity 内の局在モードの電場パターンを実空間観察を行った．

(2) プラズモニックバンドギャップ内のエネルギーにおいて．Cavity の境界における反射の位相シフトが線形変化していることを示した．

(3) Cavity モードの発光の増強度 η はバンド端から離れるほど大きくなっている．

(4) プラズモニック結晶内の SPP の減衰距離は平坦な表面と比べ 1/10 程度となっている

第6章　総括

本研究では銀表面に作製したナノ構造による SPP-光変換の過程を電子線励起発光顕微法を用いて明らかにした．以下に各章のまとめを示す

第 3 章では電子線励起発光顕微法で銀表面上に作製した高さ 100nm のステップ端からの SPP-光変換の性質について調べ以下のことを明らかにした．

(1) 電子線入射位置からの遷移放射とステップ端まで伝播した SPP との干渉によりラインスキャン像，放射科角度分解発光スペクトル像にフリンジ状のコントラストが現れる．このコントラストの周期から伝播する SPP の波数を求めることができる．

(2) 放射角度分解発光スペクトル像からステップ端における SPP-光変換の放射角度依存性，位相差を求めた．

(3) 得られた放射角度依存性，偏光特性からステップ端における SPP-光変換にはステップ端に面内な垂直な双極子を仮定することで説明できることを明らかにした

(4) ステップ端のエッジに電子線入射することで，局在プラズモンが励起している．このエッジプラズモンの発光はステップ端に面内の双極子をおくことで説明できることを明らかにした．

第 4 章では銀表面上に 1 次元周期構造を作製し，電子線励起発光顕微法でその性質を調べ以下のことを明らかにした

(1) 放射角度分解発光スペクトル測定によって試料内の SPP 分散曲線を可視化できることを示した．

(2) 波数空間においてバンドギャップ位置に対応する放射角方向に検出角を固定することで，バンドギャップ端に励起する SPP の定在波モードを可視化した．このコントラストはフォトニック LDOS のみではなく．周期構造内の干渉によって強く現れいる．

(3) プラズモニックバンドのギャップ幅が周期構造の構造単位によって変化することを示し，ギャップ幅は表面形状のフーリエ成分によって決まることを明らかにした．

(4) バンドギャップ端における発光強度は，SPP 定在波モードの腹の位置が周期構造のエッジ部分に合うと強くなることを示した．

第 5 章では 1 次元プラズモニック結晶中の Cavity に励起する局在モードを電子線励起発光顕微法を用いて観察し，以下のことを明らかにした．

(1) 電子線励起発光顕微法を用いることで Cavity 内の局在モードの電場パターンを実空間観察し，局在モードのエネルギーとモードの次数を決めることができた．

(2) プラズモニックバンドギャップ内の SPP の反射位相がエネルギーの変化に対して線形に変わっている実験的な証拠を示した.

以上より，電子線励起発光顕微法は金属表面に作製したナノ構造からの SPP-光変換過程を観察するのに有用な手法であることが分かった.

参考文献

[1] R. H. Ritchie, Phys. Rev. **106**, 874-881(1957)

[2] A. Otto, Z. Phys, **216**, 398(1968)

[3] E. Kretschmann, and H. Raether, Z. Naturf. **23A**, 2135(1968)

[4] S. A. Maier, Plasmonics: Fundamentals and Applications (Springer, 2007)

[5] M. L. Brongsma and P. G. Kik ed., "Surface Plasmon Nanophotonics, Springer Series in Optical Sciences," Vol. 131 (2007)

[6] R. Zia, J. A. Schuller, A. Chandran and M. L. Brongersm, Materials Today **9**, 20-27(2006)

[7] W.L.Barnes, A.Dereux and T.W. Ebbesen, Nature(London)**424**, 824-830(2003).

[8] A. Polman, Science, **322**, 868-869(2008)

[9] J. C. Weeber, Y. Lacroute, and A. Dereux, Phys. Rev. B, **68**, 115401 (2003)

[10] S.J.Smith and E.M.Purcell,Phys.Rev.**92**, 1069(1953)

[11] P.A.Cherenkov,Doklady Akad.Nauk SSSR **2**, 451(1934)

[12] I.E.Tamm and I.M.Frank,Doklady Akad.Nauk SSSR **14**,107(1937)

[13] I.M.Frank and V.Ginsuburg,J.phys.USSR **9**, 353(1945)

[14] P.Goldsmith and J.V.Jelley,Phil.Meg.**4**, 836(1954)

[15] V.E.Pofomov and I.M.Frank, Sov.J.Nucl.Phys.**5**, 448(1967)

[16] W.L.Barnes,T.W.Preist,S.C.Kitson,and J.R.Sambles Phys.Rev.B **54**, 6227(1996)

[17] D Heitmann, J. Phys. C **10** 397-405(1977)

[18] J.-C. Weeber, J. R. Krenn, A. Dereux, B. Lamprecht, Y. Lacroute, and J. P. Goudonnet, Phys. Rev. B, **64**, 045411 (2001)

[19] J. A. Sánchez-Gil and A. A. Maradudin, Phys. Rev. B **60**, 8359(1999)

[20] M. V. Bashevoy, F. Jonsson, K. F. MacDonald, Y. Chen and N. I. Zheludev, Opt. Express **15**, 11313-11320(2007)

[21] J.-C. Weeber, A. Bouhelier, G. Colas des Francs, L. Markey, and A. Dereux, Nano Lett. **7** 1352(2007)

[22] L. Li, J. Opt. Soc. Am. A **13**, 1024(1996)

[23] F.Fujimoto and K.Komaki, J.phys. Scc.Japan **25**, 1679(1968)

[24] E. Kröger, Z. Physik **216**, 115(1968)

[25] J. D. Jackson, Clasical Electrodynamics John Wiley and Sons. Inc., New York, N. Y.,(1975)

[26] H. Raether, "Excitation of Plasmons and Interband Transtions by Electrons" Springer-Verlag, p116 (1980)

[27] R. A. Ferrell, Phys. Rev.**111**, 1214(1958)

[28] E. A. Stern, Phys. Rev. Let. **8**, 7(1962)

[29] V. P. Siline, E. P. Fecisov, Phys. Rev. Lett. **7**, 374(1961)

[30] R. H. Ritchie, H. B. Eldridge, Phys. Rev. **126**, 1935(1962)

[31] V. E. Pafomv and I. M. Frank, Sov. J. Nucl. Phys. **5**, 448(1967)

[32] W.Steinmann,Phys. Rev. Lett.**5**, 470(1960)

[33] T. W. Ebbesen, C. Genet and S. I. Bozhevolnyi, Phys. Today **61**(5), 44-50(2008)

[34] M. R. Beversluis, A. Bouhelier and L. Novotny, Phys. Rev. B **68**, 115433-115443(2003).

[35] M. V. Bashevoy, F. Jonsson, A. V. Krasavin, N. I. Zheludev, Y. Chen, and M. I. Stockman, Nano Lett. **6**, 1113-1115(2006)

[36] J. T. van Wijngaarden, E. Verhagen, A. Polman, C. E. Ross, H. J. Lezec and H. A. Atwater, Appl. Phys. Lett. **88**, 221111(2006)

[37] N. Yamamoto, M. Nakano and T. Suzuki, Surf. Interface Anal. **38**, 1725-1730(2006).

[38] N. Yamamoto and T. Suzuki, Appl. Phys. Lett. **93**, 093114(2008)

[39] N. Yamamoto, H. Sugiyama and A. Toda, Proc. Roy. Soc. London A. **452**, 2279-2301(1996)

[40] M. Kuttge, E. J. R. Vesseur, A. F. Koenderink, H. j. Lezec, H, A, Atwater, F. J. García de Abajo, and A. Polman, Phys. Rev. B **79**, 113405(2009)

[41] F. J. García de Abajo and M. Kociak, Phy. Rev. Lett. **100**, 106804(2008)

[42] Emiliano Descrovi, Vincent Paeder, Luciana Vaccaro and Hans-Peter Herzig, Opt. Express **13** 7017(2005)

研究業績

学術雑誌等への発表論文リスト

[論文]

N. Yamamoto, M. Nakano and T. Suzuki : Light emission by surface plasmon on nano-structures of metal surfaces induced by high energy electron beam, Surf. Interface Anal.**38**, 1725-1730 (2006).

N. Yamamoto and T. Suzuki : Conversion of surface plasmon polaritons to light by a surface step ; Appl. Phys.Lett.**93**,093114 (2008)

T. Suzuki and N. Yamamoto : Cathodoluminescent spectroscopic imaging of surface plasmon polaritons in a 1-dimensional plasmonic crystal;Optics Express, **17**, 23664(2009)

[解説]

TEM/CL 法による表面プラズモンの解析:山本直紀,鈴木喬博, 塩川未久:顕微鏡 **41**, 138-141(2006)

電子線励起発光法による金属ナノ構造における表面プラズモンの研究：鈴木喬博、山本直紀：日本結晶学会誌 **50**,282-287(2008)

CL による表面プラズモン計測とプラズモニクス:山本直紀,鈴木喬博:まてりあ **48**, 633(2009)

TEM-CL 法による表面プラズモンの研究:山本直紀,鈴木喬博, 竹内健悟, 顕微鏡 **44**, No.4 (2009)

会議発表リスト (国際会議 7 件，国内会議 34 件)

国際会議発表

T. Suzuki and N. Yamamoto, Electron Beam Induced Emission by Surface Plamon on One-dimensional Metal Gratings, 5th Intern.Sympo. on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '05 (Hawaii, USA , December 4-9, 2005)poster

T. Suzuki and N. Yamamoto: Plasmonic band of metal surface with a 1-Dimensional periodic structure; 16th International Microscopy congress (IMC16) (Sapporo, Japan, September 3-8, 2006) poster

N. Yamamoto, T. Suzuki and M. Shiokawa:New Application of TEM-Cathodoluminescence Technique to Direct Imaging of Surface Plasmon; Proc. Microscopy and Microanalysis, 588CD (Florida, USA, August 5-9, 2007).oral

T. Suzuki, N. Yamamoto: Electron Beam Induced Light Emission by Surface Plasmon on One-dimensional Plasmonic Crystal; Proc. Microscopy and Microanalysis, 542CD (Florida, USA, August 5-9, 2007). oral

T. Suzuki and N. Yamamoto :Electron Beam Induced Light Emission from 1-Dimensional Plasmonic crystals; Angular-resolved Spectroscopic Measurement; Symposium on Surface and Nano Science 2008, (Appi, JAPAN, January 22-25, 2008) poster

T. Suzuki and N. Yamamoto :Band structure of 1-Dimensional Plasmonic crystals using by Electron Beam Induced Light Emission; NSS5 SP-STM2 Joint Int. Conf.,(Ohio, July 15-19,2008)poster

T. Suzuki and N. Yamamoto: Band structure of 1-Dimensional Plasmonic crystals using by Electron Beam Induced Light Emission;Nanoscience and Quantum Physics nano PHYS'09(Tokyo Japan February 23-25,2009)poster

国内会議発表

鈴木喬博、山本直紀 ：1 次元金属フォトニック構造の表面プラズモン；日本物理学会第 60 回秋季大会、（青森大学、2004 年 9 月 12-15 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀：1 次元金属フォトニック結晶のプラズモン発光　；日本物理学会第 60 回年次大会（東京理科大学、2005 年 3 月 24 日-27 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀：1 次元金属フォトニック結晶の表面プラズモン；第 66 回応用物理学会学術講演会（徳島大学、2005 年 9 月 7 日-11 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀：1 次元金属フォトニック結晶のプラズモン発光　；日本物理学会 2005 年秋季大会（同志社大学、2005 年 9 月 19 日-22 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀：1 次元プラズモニック結晶における表面プラズモンパタ-ン；応用物理学会（武蔵工業大学、2006 年 3 月 22 日-26 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀：1 次元周期構造をもつ金属表面のプラズモニックバンド；日本物理学会第 61 回年次大会（愛媛大学、2006 年 3 月 27 日-30 日）口頭

山本 直紀、鈴木喬博、塩川 未久：電子線励起発光法による表面プラズモンポラリトンの直接観察；日本物理学会第 61 回年次大会（愛媛大学、2006 年 3 月 27 日-30 日）口頭

山本直紀，鈴木喬博 ; 電子線励起発光顕微法による表面プラズモンポラリトンの直接観察；第 67 回応用物理学会（立命館大学、2006 年 8 月 29 日-9 月 1 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀; 1 次元プラズモニック結晶のバンドギャップ；第 67 回応用物理学会（立命館大学、2006 年 8 月 29 日-9 月 1 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀; Plasmonic band of metal suraface with 1-Dimensional periodic structure; 第 44 回茅コンファレンス (裏磐梯ロイヤルホテル,2006 年 9 月 8-11 日) ポスター

鈴木喬博，山本直紀：1 次元矩形構造のプラズモンモード；日本物理学会 2006 年秋季大会（千葉大学、2006 年 9 月 23 日-26 日）口頭

山本直紀，鈴木喬博，塩川未久:電子線励起発光顕微法による表面プラズモンポラリトンの直接観察 II；日本物理学会 2006 年秋季大会（千葉大学、2006 年 9 月 23 日-26 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀: 1 次元プラズモニック結晶のバンドギャップ；日本物理学会 2006 年秋季大会（千葉大学、2006 年 9 月 23 日-26 日）口頭

山本直紀，鈴木喬博：電子線励起発光顕微法による表面プラズモンポラリトンの直接観察 III；日本物理学会 2007 年春季大会（鹿児島大学、2007 年 3 月 18 日-21 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀：1 次元矩形構造のプラズモンモ-ド II；日本物理学会 2007 年春季大会（鹿児島大学、2007 年 3 月 18 日-21 日）口頭

野々山裕介，鈴木喬博，塩川未久，山本直紀：六方格子プラズモニック結晶からの表面プラズモン発光 II；日本物理学会 2007 年春季大会（鹿児島大学、2007 年 3 月 18 日-21 日）口頭

鈴木喬博，山本直紀：1 次元プラズモニック結晶の表面プラズモンモード；日本顕微鏡学会第 63 回学術講演会（朱鷺メッセ、2007 年 5 月 20-22 日）口頭

山本直紀, 鈴木喬博，塩川未久: TEM-CL 法の金属への新しい応用；日本顕微鏡学会第 63 回学術講演会（朱鷺メッセ、2007 年 5 月 20-22 日）口頭

鈴木喬博、山本直紀：電子線励起発光による 1 次元プラズモニック結晶の観察；第 23 回分析電子顕微鏡討論会 (幕張メッセ、2007 年 8 月 28 日-29 日) 口頭

鈴木喬博、山本直紀：電子線励起発光による 1 次元プラズモニック結晶の観察；日本物理学会第 62 回年次大会 (北海道大学、2007 年 9 月 21 日-24 日) 口頭

山本直紀、鈴木喬博：プラズモニック結晶からの電子線励起発光機構；日本物理学会第 62 回年次大会 (北海道大学、2007 年 9 月 21 日-24 日) 口頭

野々山祐介、鈴木喬博、山本直紀：六方格子プラズモニック結晶からの表面プラズモン発光　；日本物理学会第 62 回年次大会 (北海道大学、2007 年 9 月 21 日-24 日) 口頭

鈴木喬博、山本直紀：電子線励起発光顕微法による 1 次元プラズモニック結晶の観察；日本結晶学会年会 (東京工業大学、2007 年 12 月 1 日-2 日) ポスター

鈴木喬博、山本直紀：電子線励起発光顕微法による 1 次元プラズモニック結晶の観察；量子ナノ物理学第３回公開シンポジウム（五反田ゆうぽうと、2007 年 12 月 20-21 日）ポスター

山本直紀, 鈴木喬博：電子線励起発光法による表面プラズモン分散の測定；日本物理学会第 63 回年次大会 (近畿大学、2008 年 3 月 22 日-26 日) 口頭

鈴木喬博, 山本直紀：1 次元プラズモニック結晶のハンド構造；日本物理学会第 63 回年次大会 (近畿大学、2008 年 3 月 22 日-26 日) 口頭

鈴木喬博, 山本直紀：1 次元プラズモニック結晶による表面プラズモン-光変換の角度分解測定；第 55 回応用物理学関係連合講演会 (日本大学、2008 年 3 月 27 日-30 日) 口頭

山本直紀、大谷信、野々山裕介、鈴木喬博, ：TEM-CL 法による表面プラズモンの研究；顕微鏡学会 (京都国際会議場、2008 年 5 月 21 日-23 日) 口頭

鈴木喬博, 山本直紀：電子線励起によるプラズモニック結晶の表面プラズモン－光変換の放射角分布測定；顕微鏡学会 (京都国際会議場、2008 年 5 月 21 日-23 日) 口頭

鈴木喬博, 山本直紀：プラズモニック結晶の SPP モ-ド観察；日本物理学会 2008 年秋季大会（岩手大学、2008 年 9 月 19 日-22 日） 口頭

山本直紀, 鈴木喬博：電子線励起発光法による表面プラズモンの研究；日本物理学会第 65 回年次大会（立教大学、2009 年 3 月 27 日-30 日) 口頭

鈴木喬博, 山本直紀：金属表面のナノ構造からのプラズモン発光；顕微鏡学会 (仙台国際センター、2009 年 5 月 26 日-29 日) 口頭

鈴木喬博, 山本直紀：欠陥導入した１次元プラズモニック結晶の局在モ-ド；日本物理学

会 2009 年秋季大会（熊本大学、2009 年 9 月 25 日-28 日) 口頭

竹内健悟，鈴木喬博，山本直紀：2 次元プラズモニック結晶の表面プラズモンポラリトン；日本物理学会 2009 年秋季大会（熊本大学、2009 年 9 月 25 日- 28 日）ポスター

謝辞

これまでにお世話になった方への感謝の言葉を添えて，本研究の締めとさせていただきます

本研究をまとめるにあたって，山本直紀准教授には, 実験や解析方法, データの解析など研究者としての基礎を教えていただき大変感謝しています.

高柳邦夫教授, 谷城康眞助教, 田中崇之助教には，コロキウムやデータ解析のときに有益な助言をいただき感謝しています.

研究室の学生の皆さんには，研究解析の手伝いをしていただき感謝しています．特に現 M2 の久木田君には 2 章に示した座標変換用のプログラムの作成を手伝っていただき感謝しています.

最後に，博士課程まで進学したいという自分の意見を尊重してくださった，両親と姉妹に感謝します.

東京工業大学物性物理学専攻
山本研究室
鈴木 喬博