

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	走査型透過電子顕微鏡を用いたカソードルミネセンス光子相関計測
Title(English)	Study on Photon Correlation in Cathodoluminescence Using Scanning Transmission Electron Microscopy
著者(和文)	柳本宗達
Author(English)	Sotatsu Yanagimoto
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京科学大学, 報告番号:甲第224号, 授与年月日:2025年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:三宮 工,横田 紘子,中辻 寛,中村 一隆,梶川 浩太郎,秋葉 圭一郎
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Institute of Science Tokyo, Report number:甲第224号, Conferred date:2025/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位（専攻分野）： 博士 Academic Degree Requested Doctor of	(理学)
学生氏名： Student's Name	柳本 宗達		審査員主査： Chief Examiner	三宮 工

要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

ナノスケールの空間分解能で試料の光特性を計測する技術は、光学デバイスの評価に不可欠である。高速電子線を光の励起プローブとするカソードルミネセンス（CL）法は、光の回折限界を超えた空間分解能を持つ光計測技術として、古くから材料・構造分析に活用されてきた。近年の報告から、CL 光子の Hanbury Brown-Twiss (HBT) 測定により得られる相関関数が、光子バンチングと呼ばれる特異な状態を示すことが明らかにされた。本論文では、この CL-HBT 法を用いた時間分解測定および光子統計解析について、全 5 章にわたりまとめている。

第 1 章では、CL 光子の時間相関計測を行う技術についてこれまでの研究報告と有効性、現状の課題について述べた。CL-HBT 測定から得られる相関関数の解析を通じて、材料や構造の評価だけでなく、光そのものの状態に関する情報が得られる。また、光子同士の相関だけでなく、高速電子と光子の相関計測も提案されており、そこからは相互作用過程に関する多様な情報が得られることが期待される。しかしながら、CL における光子バンチングの機構については、現象論的な説明に留まっていた。また、電子光子相関においては、十分な時間分解能を有する測定は実現しておらず、得られた相関関数そのものの理論的な解釈は未整備であった。本研究では、CL 光子バンチング現象の解析手法を確立し、様々な励起過程を経る CL に対して適用可能な包括的な解釈を提供する。また、時間分解能を向上させた電子光子相関計測系を構築するとともに、相関関数そのものへの理論的解釈を与え、電子と光子の相関強度を定量的に評価する手法を提案する。これらを通じ、CL-HBT 法を基盤とした高速電子励起による光子の時間相関計測技術の確立を本研究の目的とした。

第 2 章では、理論的な背景および使用した実験装置についてまとめた。CL は一般に、コヒーレント CL とインコヒーレント CL の 2 つに大別される。コヒーレント CL には遷移放射や表面プラズモンの発光が該当し、入射電子によって電磁気的な相互作用のみで直接光子が励起される発光である。一方で、インコヒーレント CL は半導体や不純物の発光が該当し、バルクプラズモンや二次電子といった仲介粒子を介して光子の励起が起こる。これら 2 種類の CL の間では、励起過程の違いに起因した光子統計性の差異が予想される。

第 3 章では、CL-HBT 測定から得られる相関関数の解析式を導き、光子バンチングの機構を明らかにした。定式化を通じ、単一励起イベントにおける光子統計を与える相関因子を抽出する手法を確立した。相関因子は、単一励起イベントにおける光子統計がポアソン分布に従う場合は 1 となり、サブポアソン分布なら 1 より小さく、スーパーポアソン分布なら 1 より大きくなる係数である。コヒーレント CL において、実験的に検証した結果、相関因子は電子線電流に対して変化せず、常に 1 程度の値を示した。この結果は、コヒーレント CL の光子統計がポアソン分布に従うことを示し、本研究で提案する手法により、単一励起イベントの情報が適切に抽出されていることが確認された。一方、インコヒーレント CL については、実験から相関因子が 1 よりも大きい値が得られ、これは単一励起イベントにおける光子統計がスーパーポアソン分布である事を示唆する。多段的な励起過程を仮定し、実験で得られた光子統計を示す機構を説明するモデルを構築した。このモデルから、インコヒーレント CL の励起過程における、仲介粒子の励起確率や光子の発光確率といった物性パラメータの取得が、相関因子の評価によって可能であることが見出された。本章の成果は、CL における光子バンチングの機構を包括的に解釈するものであり、新たな材料評価技術としての可能性を示すものである。

第 4 章では、電子と光子の時間相関計測を行うための電子光子相関計測系の開発および、解析手法の確立に取り組んだ。電子検出にシンチレータと単一光子検出器を組み合わせた機構を導入することで、従来の方法に比べて 10 倍近く短い時間分解能を有する測定系を実現した。また、得られた相関関数を定式化することで、電子検出用のシンチレータの発光寿命に依らず、試料の発光寿命が得られることを導いた。実験的に、ダイヤモンド粒子（インコヒーレント CL）について電子光子相関計測を行い、発光寿命計測およびそのイメージングへ応用ができることを確認した。また相関関数の解析式からは、試料とシンチレータ間の光子励起数相関を表す係数を抽出可能であることが導かれた。そこで、銀ナノホール周期構造（コヒーレント CL）を試料として用い、運動量を保存した電子光子ペアの割合を変化させた測定を行う事で、この光子励起数相関係数が変化することが実験的に

確認できた。この結果は、相互作用をした粒子同士のペア相関を定量的に評価できている事を示すものであり、近年注目をされている電子と光子の量子相関技術の実現に向けた具体的な成果である。

第 5 章では、各章から導かれる結論をまとめ、今後の課題について述べた。また、本論文の成果を用いた今後の展望や波及効果について言及した。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東京科学大学リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Science Tokyo Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)
Doctoral Program

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(理学)
学生氏名： Student's Name	柳本 宗達		審査員主査： Chief Examiner	三宮 工	

要旨（英文 300 語程度）

Thesis Summary (approx.300 English Words)

Cathodoluminescence (CL) method, which utilizes a high-energy electron beam as an excitation probe of light, has been used for material and structural analysis as an optical measurement technique with nanometer-scale spatial resolution. Recent studies have revealed that the correlation function obtained from Hanbury Brown-Twiss (HBT) measurements of CL exhibits a photon bunching, indicating that the photon statistics of CL follow a super-Poisson distribution.

In this study, I formulated the correlation function obtained from the CL-HBT method using a semi-classical model and established a method to extract the inherent correlation factor, which reflects the photon statistics of the photon state excited by a single electron. The inherent correlation factor was experimentally obtained, and I discussed the photon statistics for CL with various excitation processes. First, for coherent CL, where photons are directly excited by electrons, it was confirmed the photon statistics follow a Poisson distribution, which is consistent with theoretical predictions. In contrast, for incoherent CL involving intermediate excitation processes, the inherent correlation factor itself exhibited bunching. This bunching effect was reproduced by considering a multi-step excitation model. This achievement provides a comprehensive interpretation of the photon bunching mechanism in CL.

I also explored an electron-photon (e-p) correlation measurement technique that enables the temporal correlation between transmitted electrons and emitted photons. By introducing a scintillator and a single photon detector for electron detection, sub-nanosecond time resolution is achieved which is approximately ten times shorter than that of conventional methods. By formulating the e-p correlation function, the lifetime of sample can be derived from the correlation curve independently of the scintillator's lifetime. Using this technique, the lifetime of nanodiamond particles is successfully measured and visualized. Furthermore, based on the analytical formulation, I established a method to extract a coefficient representing the photon number correlation between the sample and the scintillator. Using a periodic silver nanohole structure as a sample, it is experimentally confirmed that this coefficient varies depending on the momentum selection of electrons and photons. This achievement suggests that this method enables the quantitative evaluation of pair correlations between particles that conserve momentum through interaction processes, representing a concrete step toward the realization of quantum correlation microscopy between electrons and photons.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東京科学大学リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Science Tokyo Research Repository Website (T2R2).