

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	カソードルミネセンス法による光ナノアンテナの多次元計測
Title(English)	Multi-dimensional measurement of optical nanoantenna by cathodoluminescence technique
著者(和文)	松方妙子
Author(English)	Taeko Matsukata
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11709号, 授与年月日:2022年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:三宮 工,尾中 晋,中辻 寛,原 正彦,梶川 浩太郎,田中 拓男
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11709号, Conferred date:2022/3/26, 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 (理学) Academic Degree Requested Doctor of
学生氏名： Student's Name	松方 妙子		指導教員 (主)： 三宮 工 准教授 Academic Supervisor(main)
			指導教員 (副)： 尾中 晋 教授 Academic Supervisor(sub)

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

光ナノアンテナをはじめとする光ナノデバイスの開発にはナノ光計測法の発展が不可欠であり、発光角度・偏光・エネルギーなどの多次元的な評価が求められている。本論文は、走査型透過電子顕微鏡カソードルミネセンス(CL)法を用いた多次元パラメータ測定手法の確立とそれら手法を用いたナノ構造の光特性の測定および解析をまとめており、全8章で構成されている。

第1章では、光ナノアンテナの性能評価の指標となる要素について述べ、指向性・偏光評価可能かつ、光の回折限界を超えた分解能での電磁場の局所状態密度分布を計測可能なナノ計測技術の必要性を述べた。現在提案されているナノ計測法の中でも、高速電子線励起による高い空間分解でのマッピングと、発光角度・偏光・エネルギー分解した計測可能な CL 法が光ナノアンテナ評価に適している。一方、従来の CL 法では複数パラメータ次元を同時に計測できない問題がある。これらをふまえて、本論文の目的を、光ナノアンテナ解析にむけた、励起位置空間・角度・エネルギーの4次元同時計測と励起位置空間・発光位置空間の多空間同時測定 CL 法の確立と定めた。

第2章では、多くの光ナノアンテナで用いられる表面プラズモンの基礎と球体における平面波励起を仮定したモード解を扱う Mie 散乱について述べ、多極子モード干渉による指向性制御理解に必要な基底モードの放射角度分布についてまとめた。高速電子線励起による発光過程は、コヒーレントおよびインコヒーレント過程に大別され、特にコヒーレント過程では、電子線が白色点光源に対応するため、すべてのモードの励起が可能である。

第3章では、角度・エネルギーを同時分解する4次元 CL 法のための光学系改良と4次元データ解析手法の確立について述べた。分光器の検出面にエネルギー分散と角度分散とを直交した軸方向にそれぞれ投影する光学系に改良し、励起位置ごとに角度1次元+エネルギー1次元の CL 強度情報を一度に取得する手法を確立した(励起空間2次元+角度1次元+エネルギー1次元の4次元測定)。得られた4次元強度データの色収差を考慮したデータ較正、及び特定角度・エネルギーにおける強度マップ或いは特定励起位置における角度分解スペクトルを抽出する解析システムを構築した。

第4章では、前章で確立した4次元 CL 法を用いたシリコン単一球状ナノアンテナにおける指向性・モード解析について述べた。従来の指向性ナノアンテナは、複数の双極子素子を並べて干渉させることで指向性を実現しているため機能波長以上の構造サイズを必要としたが、本研究では高次数モードを含めた多極子干渉を用いた単一球状指向性ナノアンテナを提案する。電気・磁気モード両方を励起可能な誘電体材料のシリコン球状粒子を試料として用い、角度分解スペクトル解析から磁気・電気多極子の干渉による指向性放射を実証した。また、角度・エネルギー選択強度マッピングにおいて構造内部に電場を持つ動径方向高次モードの電場分布を可視化した。

第5章では、第3章で確立した4次元 CL 法を用いてシリコン球状粒子の円偏光位相解析を行い、単一球状アンテナからの円偏光生成が可能であること実証した。円偏光は、幾何学的にキラリティを持つ構造からのみ生成されると考えられてきたが、励起・観測系を含む系全体でキラリティをもたせることによって生成可能である。本研究では、完全な対称性をもつ単一球体について、電子線位置によって制御された位相差を持つ縮退した直交する電気双極子モード間の干渉と、電気双極子・磁気双極子モード間干渉による円偏光生成を提案した。4次元 CL 法を用いて測定した異なる6つの偏光での計測データから、ストークスパラメータ計算を通して円偏光位相分布を抽出し、単一球状ナノアンテナにおける円偏光生成を明らかにし、励起位置・エネルギー・角度による回転方向制御が可能であることを示した。

第6章では、励起位置の2次元スキャンに対応付けた発光位置イメージングを行う励起発光同時観測(SEEM)法の光学系と計測ハードウェア制御・解析手法の確立について述べた。4次元 CL 法の光学系の光学パスをハーフミラーで分岐し、CL 光の発光位置空間をカメラに結像する光学系を新たに配置した。電子線走査と発光位置イメージングとを同期させる制御ソフトウェアと、励起位置2次元+発光位置2次元の4次元強度情報の解析ソフトウェアを作成した。SEEM 法の評価実験においては、検出角度領域を選択することにより、発光位置空間のカメラへの投影面が選択できることを示した。また、発光スポット分解した CL 強度マップの抽出を行った。さらに、発光スポットの重心評価により光の回折限界を越えた超解像の発光位置決定が可能であることを示した。

第7章では、前章で確立した SEEM 法を用いて、励起位置と発光位置が異なる導波系を持つアンテナ構造の発光位置解析を行った。導波系を持つアンテナ構造のモデル構造として、銀ナノワイヤ構造とホールを有した銀薄膜構造を測定した。ナノワイヤの短軸に平行な偏光での計測では、伝搬モードよりも励起位置に局在するモードの

発光が支配的であることがわかった。ホールを有した銀薄膜構造の発光位置分解計測では、受信・発信アンテナであるホール間の電磁波のエネルギーが表面プラズモンポラリトンを介して移送されていることを可視化した。

第 8 章では、各章から導かれる結論をそれぞれまとめ、今後の課題を検討するとともに、本論文の総括と研究の展望について述べた。

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、東工大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 Tokyo Tech 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)： 博士 Academic Degree Requested Doctor of	(理学)
学生氏名： Student's Name	松方 妙子		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	三宮 工 准教授
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)	尾中 晋 教授

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

To develop optical nanoantennas, essential elements in optical nanodevices, nano-optical measurement techniques are required since the optical fields of nanoantennas are confined on the nanoscales. Among various characterization techniques, cathodoluminescence (CL) techniques are most suited for evaluating optical nanoantennas since they can provide angle-, polarization-, and energy-resolved field mapping with high spatial resolution through fast electron excitation. However, in conventional CL methods, it is necessary to perform multiple CL measurements for multiple parameters. In this study, CL techniques to simultaneously measure multiple parameters, i.e. multi-dimensional datasets, are developed. The four-dimensional CL (4D-CL) method enables acquiring angle- and energy-dispersed CL intensity patterns in synchronization with the electron beam scan. The simultaneous excitation and emission mapping (SEEM) method enables emission position imaging synchronized with the electron beam scan. In addition, these multi-dimensional measurement methods are applied to demonstrate new concepts in nanoantennas.

In the 4D-CL method, a CL intensity pattern, in which the angle- and energy-dependent information is dispersed on a spectrometer camera, is measured at each step of the electron beam scan. The 4D information, i.e. excitation position (2D) + angle (1D) + energy (1D), can be measured by a single electron beam scan. By this 4D-CL method, it is revealed that multipole interferences up to higher-order modes excited in a single particle can generate highly directional emissions, which indicates the realization of a single particle directional nanoantenna that can be much smaller than conventional Yagi-Uda-type antennas. Through the optical phase extraction analysis by Stokes parameter calculation of the 4D datasets, it has also been demonstrated that circularly polarized light from a single spherical antenna with no geometrical chirality can be generated by the fast electron excitation.

In the SEEM method, emission position space is projected onto a camera in synchronization with the electron beam scan, and two spatial information, i.e. excitation position space + emission position space, is acquired by one shot of measurement. The SEEM method is applied to analyze two antenna systems in which the excitation and emission positions are spatially separated. For the silver nanowire measurement, it is found that the local mode emission is dominantly observed for the short-axis polarization. For the silver thin films with a single hole and a hole-pair, the energy transfer between the receiving and transmitting antennas (holes) via surface plasmon polaritons is visualized by extracting the emission from one hole.

In conclusion, the multi-dimensional CL methods that can simultaneously analyze multiple parameters have been developed. By the newly developed CL methods, new concepts of single-particle nanoantennas are proposed and proved. Such a comprehensive analysis technique is useful also for the characterization of optical materials and devices in general.

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 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大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 Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).