**Introduction:**中赤外域において金表面を伝搬する**SPP**の伝搬長を測定し、結晶のモルフォロジーと関連づけることの重要性

・中赤外域の金属プラズモニクスは表面増強分光、プラズモニック導波路、検出器高感度化、熱輻射制御、光電界電子放出などに有用である。

・こうした場面での性能は、表面プラズモン（SPPあるいはLSP）を励起した際の電場増強度、ひいては、表面プラズモンの損失レート（減衰時間）に強く依存する。

・損失レートは輻射ロスと非輻射ロスに分けられる。前者は伝搬光とのカップリングの強さであり、金属のナノスケールの形状によって変化する。後者は金属材料の誘電率（虚部）によって表現されるが、ミクロには電子－電子散乱と電子－格子散乱のレートによって決まり、これらは材料のモルフォロジーに強く依存する。

可視～赤外域の

・ところが、中赤外域において（銅表面を伝搬するSPPの伝搬長の報告はあるが）金表面を伝搬するSPPの伝搬長は測定されていない 。

・そこで、我々は、中赤外域で金表面を伝搬するSPPの伝搬長と表面モルフォロジーを相関させて計測した。

・中赤外光の波長(と中赤外SPPの波長)は普通、多結晶の結晶粒径に比べて大幅に大きい

・SPPの減衰メカニズムの原理的な理解は、プラズモニクスの応用の観点から重要

**Experimental Setup: SPP**と伝搬光をグレーティングを用いて結合し、伝搬光のパワーを測定することにより、**SPP**の伝搬長を評価した

・実験の概念(in/out-coupler)

・光学実験の詳細(光源、PWM制御、光学配置、入射光線の入射角と絞り角とスポットサイズ、パワーメータ、ガイドレーザー)

光学実験の模式図: 伝搬光は絞りこまれてin-couplerに入射され、信号光はout-couplerと光学的に共役なパワーメータで検出する

**Sample:** 金下地のある導波路構造を電子線リソグラフィーにより作成した後、**600℃**と**700℃**で**2**回アニールした

・導波路のデザイン(導波路の長さと幅、グレーティングのピッチ)と配置(間隔)

・RCWAによるグレーティング溝深さの考察

・試料の作成方法(EBリソグラフィーと蒸着)

・アニールの手続き(600℃で20分、700℃で16分)

導波路の設計図:左側のin-couplerで励起されたSPPは長さ3,5,7,9,11mmの導波路を伝搬し、右側の幅広になったout-couplerで伝搬光を励起する

RCWAによる反射効率の計算データ: 角度広がりのある光線をグレーティングに入射したとき、SPPを励起するための最適な溝深さは1.0μm程度

**Result:** アニールを行うと**SPP**の伝搬長が大きくなり、薄膜のモルフォロジーも変化した

=伝搬長の測定実験

・アニール前の伝搬長が9.01±0.26mm、600℃で20分アニールすると11.96±0.42mm、さらに700℃で16分アニールすると14.74±0.65mmだった

・アニールすればするほど、伝搬長が大きくなった

・レーザーのパワードリフトやアニールによるグレーティングの変形の影響を取り除くため、グラフの励起光パワーを規格化した

・SPPと伝搬光の結合効率は最大18％程度。アニールしてもグレーティングは変形せず、SPPと伝搬光の結合効率も変化しなかったが、SPPを励起するのに最適な入射角がシフトした

=結晶のモルフォロジー

・1平方μmあたりにある結晶粒の数を手で数えることにより、結晶粒径を推定した

・アニール前の結晶粒の大きさは70nm程度

・600℃でアニールするとアニール前に比べ結晶粒が大幅に大きくなり、200nmのオーダーになった

・さらに700℃でアニールしても、結晶粒は200nmのオーダーのまま、大きくならなかった。しかし、この結果は結晶のモルフォロジーが変化していないことを必ずしも意味しない。なぜなら、AFMでは結晶の中で結晶粒がどのように詰まっているか分からないからだ

・アニールすると表面に1μmオーダーのピンホールが空いた

正規化されたout-couple光のパワー: out-couplerから出てくる伝搬光のパワーを規格化し、SPPが伝搬した距離に対する指数曲線でフィッティングした

導波路表面の3次元AFM写真:　1平方μmの領域での3次元AFM写真を、高さ方向のスケールを揃えて、左からアニール前、600℃で20分アニール後、さらに700℃で16分アニールしたものの順で並べた

**Discussion:**アニールによる伝搬長の増大は、金のモルフォロジーの変化に起因する

=実験結果の考察

・誘電率データ(Palikらによる多結晶のデータ)から計算した伝搬長は12.3 mm。

・As grown試料およびアニール後試料のいずれにおいても、この値と矛盾しない伝搬長が測定された。

・アニール前の試料と600℃でアニール後とを比べると、表面の結晶粒が大きくなりSPP伝搬長が大きくなった

・アニールにより伝搬長が大きくなった理由は、一つ一つの結晶が大きくなり結晶粒界での電子の散乱の影響が小さくなったからである

・さらに700℃でアニールすると、結晶粒の増大は確認できなかったが、SPPの伝搬長が大きくなっている

・700℃でアニールした後も結晶内部のモルフォロジーは変化し、伝搬長が長くなったと筆者は考える

・本実験で表面に空いたピンホールの影響は、結晶モルフォロジーの影響に比べて小さい

=実験結果の意義

・中赤外域において伝搬光とSPPの波長は結晶粒に比べ遥かに大きいが、結晶粒や表面モルフォロジーの変化によって伝搬長が大きくなることを示した

・アニールによりモルフォロジーが変化して、伝搬長が14mmを超えうることを示したことは、センシングや光通信などの応用の観点から重要だ

=今後の課題

・本研究では結晶のモルフォロジーを、AFMを用いて表面の状態から推定した。この手法は簡便であるが結晶の表面における特性のみしか評価できない。SPPによる近接電場は表面から薄膜内部に侵入するため、SPP伝搬に寄与する正確な結晶特性が分からないという課題がある

・表面と結晶内部のモルフォロジーを分析し体系的にSPP伝搬長と比較することは、プラズモニックなロスの原理的な理解に役立つ

**7. Conclusion:** 中赤外域において金表面を伝搬する**SPP**の伝搬長を精度よく測定し、モルフォロジーと関連づけた

・中赤外域において金表面を伝搬するSPPの伝搬長さを、初めて計測した

・およそ多結晶の金の誘電率から予測される伝搬長が計測された。

・波長が結晶粒に比べ遥かに大きな中赤外域においても、金表面を伝搬するSPPの伝搬長が、結晶のモルフォロジーと関係していることを示した

・中赤外域のSPPの伝搬長さはアニールによって大きくなり、14mmを超えうることを示した。これらは、応用の観点から重要だ。