

Optical emission using interaction of electron beam and surface plasmons on silver diffraction grating

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2020-05-25 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.24517/00058253

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



銀回折格子上の表面プラズモンと電子ビーム との相互作用を利用した光放射

桑村 有司[†] 板倉 圭佑

金沢大学 〒920-1192 石川県金沢市角間町
E-mail: kuwamura@ec.t.kanazawa-u.ac.jp

あらまし 金属回折格子上の表面プラズモンと真空中を走行する電子ビームを利用した新しい光発生法を実験的に検証した。金属回折格子 I 上の表面プラズモンを利用してその位相速度 v_{spp} を光速 c の $1/3$ 程度まで遅くしておき、その表面に沿って電子を群速度 v_e で走行させると、 $v_{spp}=v_e$ の条件で表面プラズモンが発生する。この表面プラズモンを異なる周期の金属回折格子 II で光に変換して真空側に出力させる。実験では、周期 500nm の銀回折格子 I と 1800nm の回折格子 II を利用した。真空/銀回折格子に沿って 30~40 kV に加速した電子を走行させた時、スミス・パーセル放射（波長 1.3-1.5 μ m 帯）より長波長側の 2.0~1.9 μ m 帯に新たな光放射が観測された。この光放射は、 $v_{spp}=v_e$ から求まる条件と一致し、表面プラズモン発生が関与した発光である事が実証された。

キーワード 表面プラズモン, 電子ビーム, 光放射, 金属回折格子

Optical emission using interaction of electron beam and surface plasmons on silver diffraction grating

Yuji KUWAMURA[†] and Keisuke ITAKURA

Kanazawa University Kakuma, Kanazawa-shi, Ishikawa, 920-1192 Japan

E-mail: [†]kuwamura@ec.t.kanazawa-u.ac.jp

Abstract The new optical generation method that we had proposed using the surface plasmon on the metallic grating and the traveling electron in the vacuum was experimentally verified. Phase velocity v_{spp} of the surface plasmon mode is slowed down to about $1/3$ of speed of light c by using the surface plasmon at the metallic diffraction grating I interface, and the electron beam is propagated along the surface of the metallic grating I. In the condition of $v_{spp}=v_e$, the surface plasmon is generated. This surface plasmon is converted into light by metallic diffraction grating II with a different period and it outputs it to the vacuum side. In the experiment, silver grating I of the period 500 nm and silver grating II of 1800 nm were used. When the electron that accelerated to 30-40kV ran along the interface, a new optical radiation was observed to 1.9-2.0 μ m band in the long-wavelength side from the Smith Purcell radiation of 1.3-1.5 μ m band. The condition that this optical radiation is generated was corresponding to the condition of $v_{sp}=v_e$ and we demonstrated that this optical radiation was caused by surface plasmon generation.

Keyword Surface plasmon, Electron beam, Optical radiation, metallic diffraction grating

1. はじめに

通常のレーザの動作波長は材料のエネルギー準位で定まるため、未開発の波長領域での動作を得るには、新しい材料を見つけ出さなければならない。申請者らは、マイクロ波から紫外線までの欲しい波長で動作する新型の光放射やレーザを実現するため、真空中を進行する電子と誘電体導波路で遅延させた光を利用したチェレンコフ放射タイプの発光デバイスを提案して開発を進めてきた^[1]。一方、金属/真空表面では、金属

内の自由電子の集団的振動と電磁波が結合した表面電磁波モードが表面に沿って伝搬することができる。この表面電磁波モードは表面プラズモンまたは表面プラズモンポラリトン（以下 SPP と略す）と呼ばれる。

我々は、真空中を進行する電子と SPP との相互作用を利用した新型光・電磁波光源を提案している。本報告では、図 1 のように金属回折格子 I 表面に沿って電子ビームを走行させて SPP を発生させ、回折格子 II で SPP を光として取り出す方式の光源の基本動作確認を

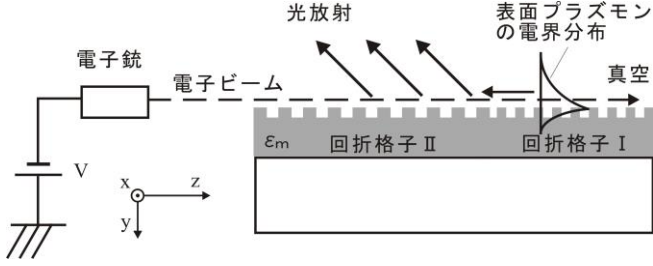


図1 表面プラズモンを使用した光放射器の構造

行い、波長 1.9-2.0 μm 帯での発光が観測されたことについて報告する。

2. 新型光放射器の提案

2.1 光放射器の構造

図1に示すように提案・開発している光源は、電子銃と周期の異なる2つの金属回折格子IとIIで構成する。電子ビームは回折格子上の真空領域に沿って走行し、右側の回折格子IでSPPを発生、左側の回折格子IIでは界面を $-z$ 方向に伝搬するSPPを回折させ光として上側方向に出力させるために利用している。金属回折格子I/真空界面では、電界成分が真空側にエバネッセント波として染み出した表面プラズモンが位相速度 v_{SPP} で伝搬できる。その領域に沿って $+z$ 方向に群速度 v_e の電子ビームを走行させると、下記の2つの条件が満たされると、回折格子I上を $-z$ 方向に進むSPPが発生する。SPP発生のための条件は、

- i) 電子の群速度 v_e とSPPの位相速度 v_{SPP} が一致する。
- ii) 電子の進行方向にSPPの電界成分が存在する。

である。SPPは z 方向に電界成分を持つTMモードであるため、2)の条件は満たされている。発生したSPPは $-z$ 方向に進行して、領域IIの金属回折格子II上を伝搬すると、真空側の上側方向に回折して光として放射する。

2.2 電子ビームによる表面プラズモン発生の原理 - 電子波動での扱い-

電子ビームによるSPP発生の原理を以下に示す。図2には進行する電子のエネルギー準位 E_i と波数 k_i の関係を示した。真空中を一定速度で進行している電子の初期準位を b とし、エネルギーの低い準位 a への電子遷移を考える。金属回折格子上のSPPの波数を k_z 、エネルギーを $\hbar\omega$ として $e^{j(\omega t - k_z z)}$ の波で表す。電子遷移中の電子とSPPの間に、

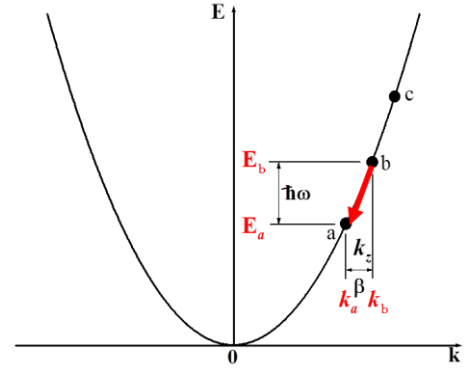


図2 進行する電子のエネルギーと波数の関係

$$E_b - E_a = \hbar\omega \quad (1)$$

$$\hbar(k_b - k_a) = \hbar k_z \quad (2)$$

エネルギー保存則と運動量保存則が成立すると、準位 b から a への電子遷移が可能となり、SPPが発生する。式(1)と(2)が成立すると、電子群速度 v_e の定義式より、

$$v_e = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial E}{\partial k} \approx \frac{1}{\hbar} \frac{E_b - E_a}{k_b - k_a} = \frac{\omega}{k_z} = v_{\text{SPP}} \quad (3)$$

となり、SPP発生条件i)が導出される。

電子を波動として扱うと、準位 b から a への電子遷移中には2つの電子波のビート振動より縦波の交流電流

$$e^{j(E_b - E_a)t/\hbar - (k_b - k_a)z} = e^{j\{\omega_{ba}t - (\omega_{ba}/v_e)z\}} \quad (4)$$

が生じる。ここで、 $E_b = \hbar\omega_b$ 、 $\omega_{ba} = \omega_b - \omega_a$ とした。式(1)と(2)が成立して、両者の波が一致すれば、準位 ba 間の電子ビームによるビート振動が交流電流の駆動源となり、SPPを励振することができる。次節では電子を点電荷として古典的に扱った場合の原理についても説明する。なお、電子が準位 b から c へ遷移すれば、SPPは吸収される。

2.3 金属回折格子上のSPPの分散関係および電子加速電圧とSPP発生波長の関係

平坦な金属/真空界面を z 方向に伝搬するSPPの分散関係は、その波数を k_0 とすると、

$$k_0 = \sqrt{\frac{\epsilon_m(\omega)}{1 + \epsilon_m(\omega)}} \frac{\omega}{c} \quad (5)$$

となる。ここで、 $\epsilon_m(\omega)$ は金属の比誘電率である。図3には平坦界面のSPP分散曲線を $m=0$ の曲線で示した。一方、周期構造 Λ の金属回折格子上を z 方向に伝搬するSPPの電磁界分布は、基本波の波数 k の他にグレーティングで生じる逆格子 $2\pi/\Lambda$ の整数倍で変調を受けるようになる。このため、回折格子上のSPPの波数に

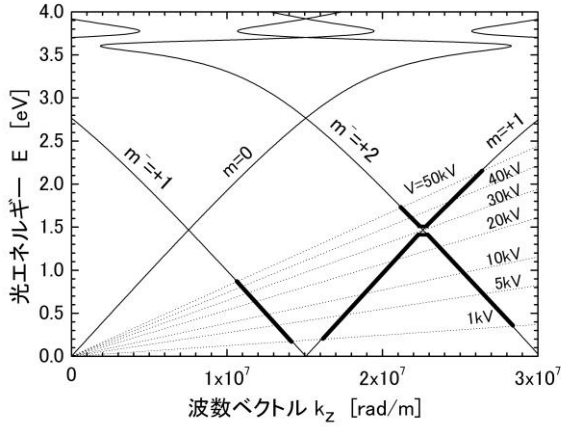


図3 Ag 回折格子上 SPP と電子ビームの分散曲線

は、基本波数成分 k_{g0} の他に

$$k_{mz} = k_{g0} + m(2\pi/\Lambda) \quad (6)$$

の高調波成分が生じる．その結果，回折格子上の SPP 電界の z 方向成分 $E_z(y, z)$ は，フロッケの定理より，

$$E_z(y, z) = \sum_{m=-\infty, -2, -1, 0, 1, 2, \dots} E_m(y) e^{j\{\alpha z - (\pm k_{g0} + m(2\pi/\Lambda))z\}} \quad (7)$$

の合成波として記述できる．一般的には回折格子上の式(7)中の波数 k_{g0} は式(5)の波数 k_0 とは異なるが， k_0 で近似した時の回折格子（周期 $\Lambda=400\text{nm}$ ）上の SPP の分散関係を図3中に $m=\pm 1, \pm 2 \dots$ の実線で示した．図3中の $m=+1, +2 \dots$ は前進波， $m=-1, -2 \dots$ は後退波の高調波成分である．

一方， x 方向の線上に並んだ電子の集合を一本の線電荷密度 τ とみなし，この線電荷が，位置 $y=0$ を z 軸に沿って速度 v_e で進行すると，単位長さあたりに生じる電流 J_z は，フーリエ解析を用いて，

$$J_z = -\tau v_e \delta(y) \delta(z - v_e t) \\ = -(\tau / 2\pi) \delta(y) \int_{-\infty}^{+\infty} e^{j\omega(t - z/v_e)} d\omega \quad (8)$$

と書ける．式(8)の J_z のフーリエ成分の縦波 $e^{j(\alpha z - (\omega/v_e)z)}$ が，式(7)中の SPP 電界の z 成分の波と一致すると（条件 i）と ii））， J_z は電流源となり SPP モードを発生させることができる．図3中の点線は，式(8)で表される一定電圧（1～50kV）で加速された真空中を進行する電子ビームの分散関係 $k_{ba} = \omega_{ba}/v_e$ である．図3中の実線と点線の交点では式(7)と式(8)中の両者の縦波成分が一致する．図3中には交点の実現可能な状態を太い実線で示してあるが，この条件において，進行する電子の運動エネルギーの一部が SPP へと移り，SPP を発生させることが可能となる．

より正確な回折格子上の SPP の分散関係については，FDTD 法によるシミュレーションと境界面を含むグリーンの定理とグリーン関数を利用した Bernado Laks らの解析法^[2]を利用して数値計算を行った．周期

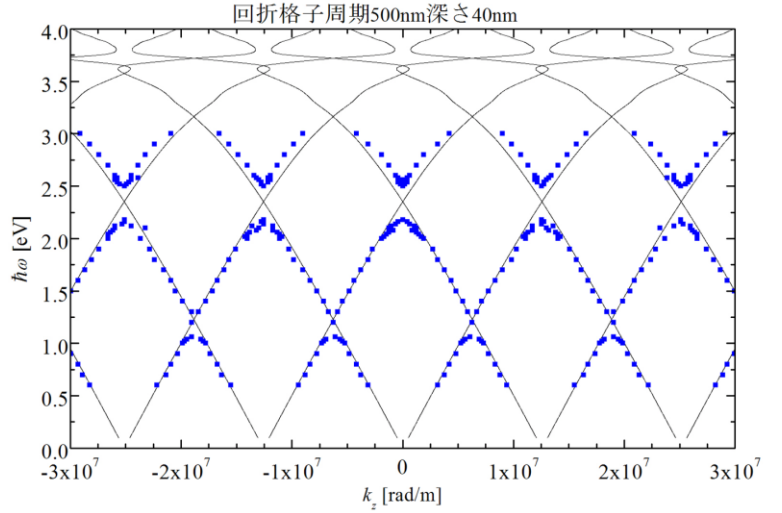


図4 FDTD法で計算した Ag 回折格子上の SPP 分散曲線

500nm，深さ 40nm の矩形形状の Ag 回折格子上の SPP の分散曲線を FDTD 法により計算した例を図4中の青丸で示す．波数 k_z は FDTD 計算により求めた z 方向の電磁界の空間分布をフーリエ変換して求めた．図4中の実線は，式(7)と(5)を用いた近似計算である．FDTD 計算では，実線の交差する光エネルギー帯においてストップバンドが確認される．これはよく知られているように波数 k_z が π/Λ の整数倍であるとき，回折格子によるブラッグ反射により，SPP の前進波と後進波が干渉を起こして定在波となり SPP が伝搬できなくなるために生じる現象で，ストップバンド帯では SPP モードは存在できなくなる．

一方，Bernado Laks らの解析法^[2]により求めた Ag 回折格子上の SPP の分散曲線を図5中の実線で示した．

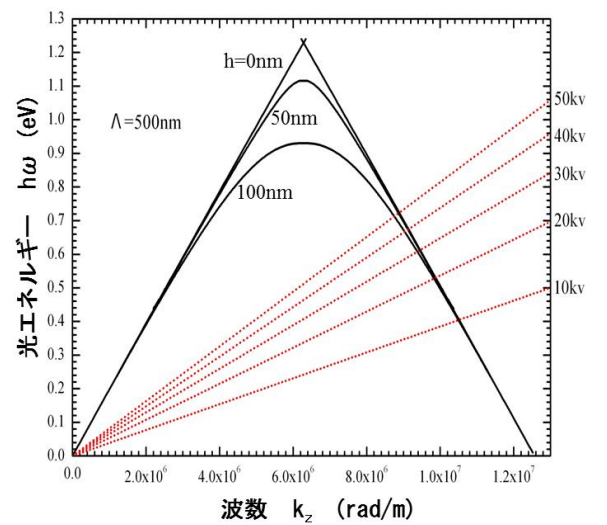


図5 Bernado Laks らの解析法により求めた Ag 回折格子上の SPP の分散曲線

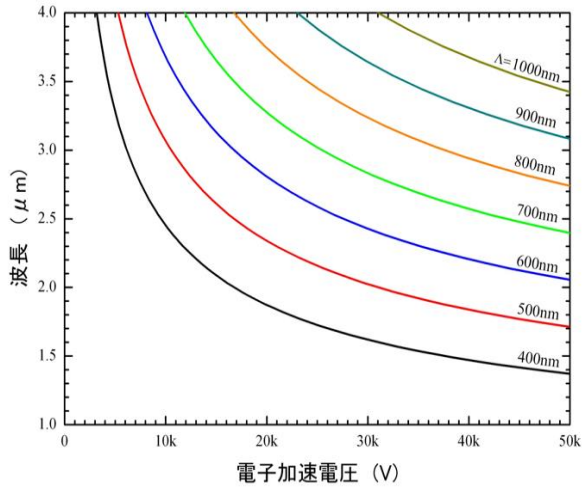


図6 電子加速電圧 V と発生可能な SPP 波長の関係

回折格子の周期 500nm, 形状は $\sin$ 形状とし, 深さ h をパラメータとして示した. 格子の深さ h によって SPP の分散曲線は変化し, 特にブラック反射条件に近い領域ではその変化量は大きい. また, 図 5 中の赤点線は, 真空中の電子ビームの分散関係 $k_{ba} = \omega_{ba} / v_e$ であり, 相対論を考慮して

$$v_e = c \sqrt{1 - \frac{1}{(1 + eV / m_0 c^2)^2}} \quad (9)$$

より求めた. ここで, V は電子の加速電圧である. 両者の交点, $v_e = v_{spp}$ の条件で SPP 発生が発生する. 図 6 には, 電子加速電圧 V と発生可能な SPP 波長の関係を回折格子周期 Λ を変化して計算した. 周期 $\Lambda = 500$ nm の Ag 回折格子では加速電圧 20–50kV (研究室所有の電子銃で加速可能な電圧範囲) の電子ビームで走行させると, 約 2.4~1.7 μ m 帯の SPP が発生すると予想される.

3. 金属回折格子 I・II の設計と作製

図 1 で説明したように金属回折格子 I / 空気界面で SPP を発生させ, 後退波として伝搬する SPP を回折格子 II で回折させ上側に光として出力させる. SPP の光学的な伝搬特性は, 使用する金属の材質や波長帯により大きく異なる. また, 回折格子 I の周期は発生する SPP の波長帯, 回折格子の深さ h は電子ビームとの相互作用の強さを決める要因である. そこで, これらのパラメータを評価して回折格子設計を行った.

平坦な金属/真空界面での SPP の伝搬距離 L は, 金属内部での光損失のため可視領域では数~数十 μ m と短い. SPP の伝搬距離は, 光電力の強度が $1/e$ まで減衰する長さとして定義され, 次式で明記される.

$$L = \frac{1}{2\text{Im}[k_z]} = \frac{c}{\omega} \left(\frac{\epsilon_m + 1}{\epsilon_m} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{(\text{Im}[\epsilon_m])^2}{\text{Re}[\epsilon_m]} \quad (10)$$

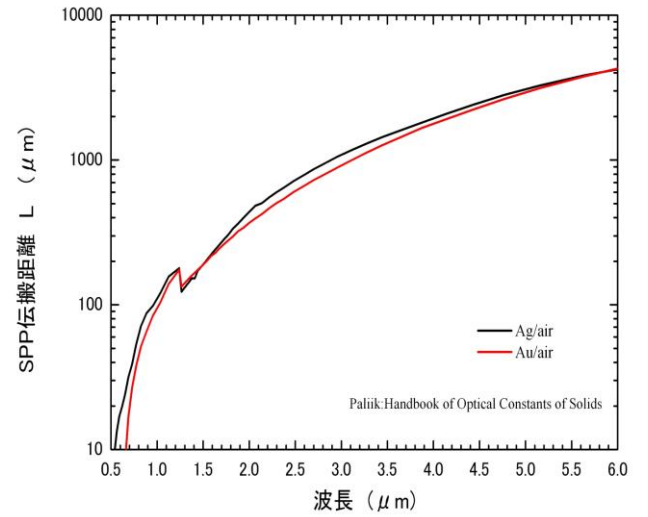


図7 平坦な Ag/真空界面での SPP 伝搬距離

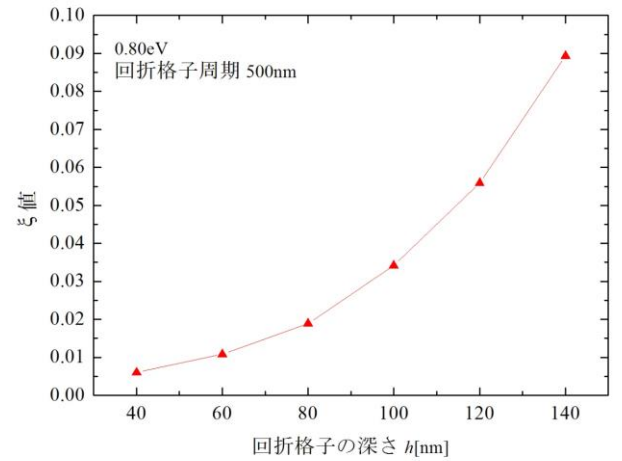


図8 ξ 値と回折格子深さの関係

図 7 には伝搬距離の長い金属として, 銀/真空及び金/真空界面を選び, 両者の SPP 伝搬距離を見積った. 伝搬距離が比較的長く, 実験の行い易い波長として 2 μ m 近傍の SPP を発生させることとし, 図 6 の結果より回折格子 I の周期は 500nm とした. 波長 2 μ m の SPP は, 銀・金とも数百 μ m 程度まで伝搬できるが, 本研究では伝搬距離をより長くできる銀を選択した. そして, 回折格子 I の長さ ℓ_1 は, $\ell_1 < L$ を満たすように 40 μ m に設定した. 一方, 回折格子 II の周期は出力光がほぼ上側に出力されるように 1.8 μ m とし, 長さ ℓ_2 は 60 μ m とした. 決定した回折格子寸法を表 1 にまとめた.

回折格子上の SPP 電界は, 式 (7) のような合成波で記述できる. 合成波の内, 電子ビームと相互作用可能な成分は, 図 3 中で太い実線で示した次数の波成分であり, これらの成分が大きいほど, 電子ビームから SPP へのエネルギー変換効率が大きくなると期待できる. そこで,

$$\xi \equiv \frac{\text{真空領域に染み出した } m=+1 \text{ 後退波の電界 } z \text{ 成分のエネルギー}}{\text{SPP 電界の全エネルギー}}$$

表 1 使用した銀回折格子 I と II の周期と長さ

	周 期	長 さ
銀回折格子 I	$\Lambda = 500\text{nm}$	$\ell_1 = 40\mu\text{m}$
銀回折格子 II	$\Gamma = 1.8\mu\text{m}$	$\ell_2 = 60\mu\text{m}$

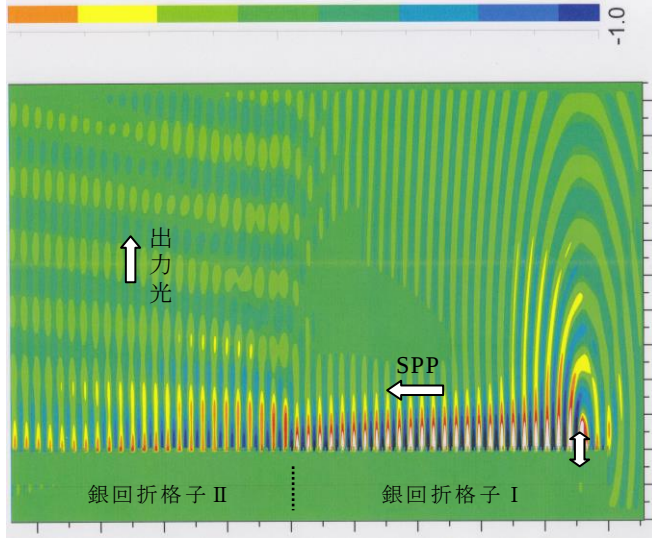


図 9 回折格子 II からの光出力の様子 (FDTD 計算)

を定義した. そして, ξ 値と格子の深さ h との関係を FDTD 計算により評価した. 回折格子の形状は矩形で, 周期 500nm を仮定した. $\hbar\omega = 0.8\text{eV}$ での計算結果を図 8 に示す. 深さ h が深くなるにつれ, ξ 値は増加し, 深さ $h = 140\text{nm}$ では ξ 値は 0.09 まで大きくなった.

次に表 1 の回折格子構造を仮定して回折格子 II から光が出力できることを確かめるため, FDTD 計算を行った. その結果を図 9 に磁界の x 方向成分で示した. $\updownarrow$ の位置に電気双極子を置き周波数 $1.5955 \times 10^{14}\text{Hz}$ (波長 $1.879\mu\text{m}$) で振動し, 回折格子 I 界面に SPP を $-z$ 方向に励振させた. SPP は回折格子 I を伝搬して, 回折格子 II まで到達すると回折され, そのエネルギーは平面波としてほぼ上側方向に出力されることが確認された. 実験では光出力を大きくする目的で, 図 10(a) に示すように表 1 の回折格子 I・II を 10 ブロック数珠つなぎした回折格子を作製した. 電子線用レジスト ZEP520A を塗布した Si 基板上に電子ビーム描画装置で回折格子パターンを描いた後, CF_4 ガスを用いたドライエッチング装置で削り, Si 基板上に凹凸構造を形成した. その後, 銀膜を真空中で蒸着して回折格子を作製した. 作製した回折格子に斜め上から白色光を照射して撮影した回折格子の写真を図 10(b) に示した. レーザ光を入射した時の反射光の回折角を測定した結果, I と II の回折格子周期は, ほぼ $\Lambda = 500\text{nm}$, $\Gamma = 1.8\mu\text{m}$ で形成されていることを確認した.

4. 光放射実験

作製した銀回折格子を真空装置内に設置して, 図 11

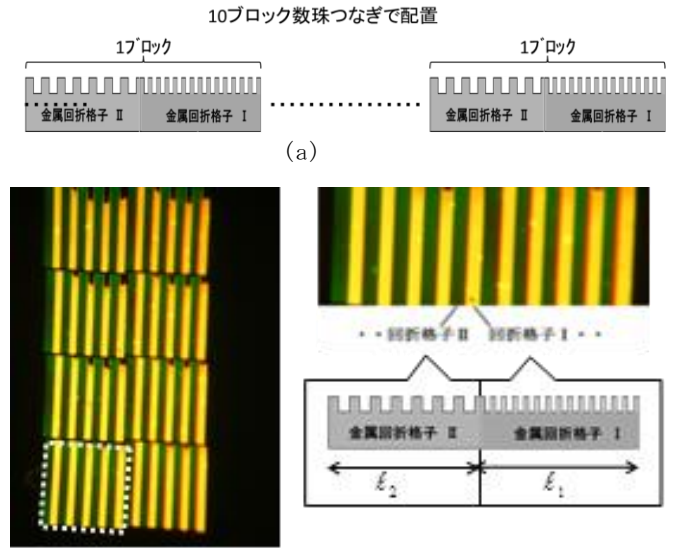


図 10 作製した銀回折格子 I と II の表面写真

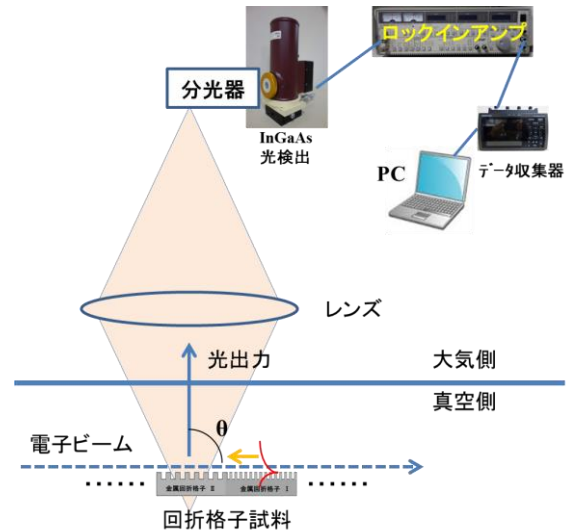


図 11 光放射を観測した実験系

のように回折格子表面に沿って電子ビームを進行させた. そして, 上側方向に出力された発光を観測した. 出力光は大気側でレンズを用いて集光し, 分光器 (日本分光 CT-10) で分光, 液体窒素冷却プリアンプ付 InGaAs 光検出器 (浜松ホトニクス G7754-03) で検出した. 出力光の測定にはロックインアンプ法を用いた. 電子銃の偏向コイルに 10Hz の矩形電流を流して電子ビームの走行位置を上下に変化させた. 50ms の半周期の時間帯は図 11 のように回折格子表面に沿って電子ビームを走行させたが, ビームは表面に接触してしまった. しかしながらこの時間帯には発光が観測された. 残りの 50ms 帯は電子ビームを表面から大きく上側に逸らせたため, 発光は観測されなかった. ロックインアンプ法により不要な雑音を減少させることで回折格子からの出力光の観測が可能となった. 測定データは, データ収集器 (GL-900) からパソコンに取り込んだ. 光放射の出力角 θ は図 11 中に示した電子ビームの進行方向をゼロとしたときの出力光の放射角度とした.

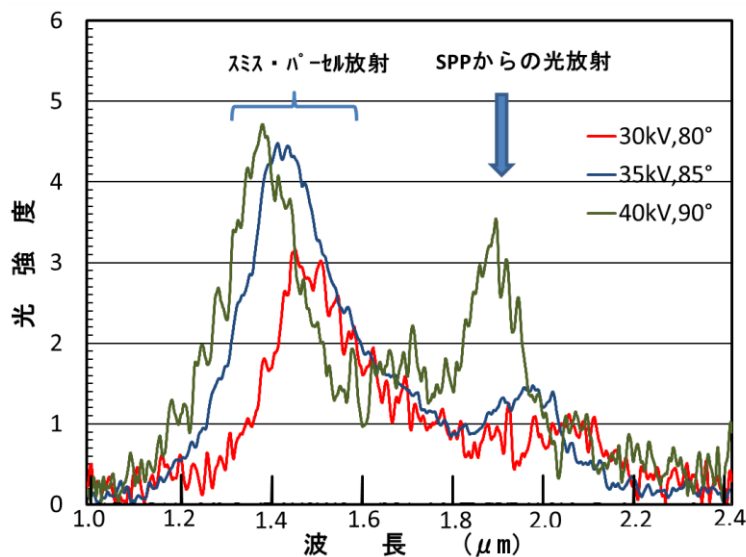


図 12 発光スペクトルの一例

発光スペクトルの一例を図 12 に示した。発光スペクトルは、電子加速電圧 $V=30\text{ kV}$ - $\theta=80^\circ$ 、 $V=35\text{ kV}$ - $\theta=85^\circ$ 、 $V=40\text{ kV}$ - $\theta=90^\circ$ の条件でそれぞれ測定した。出力光には偏光依存があり、電界が回折格子の溝に対して垂直な偏光 (z 方向) の光だけが観測され、平行な偏光の光はなかった。このため、基板材料からの発光ではないと判断した。図 12 には、 $1.2\sim 1.6\text{ }\mu\text{m}$ と $1.8\sim 2.2\text{ }\mu\text{m}$ に光強度の強い波長帯が観測された。波長 $1.2\sim 1.6\text{ }\mu\text{m}$ の発光は、従来から知られているスミス・パーセル放射^[3,4]に起因した発光であった。金属回折格子から輻射されるスミス・パーセル放射光の波長 λ は、

$$\lambda = -\frac{d(1-\gamma\cos\theta)}{n\gamma} \quad (11)$$

で与えられる。ここで d は回折格子の周期、 n は回折の次数、 γ は相対論効果を考慮した電子ビームと光速の速度比である。表 2 には回折格子 I と回折格子 II から放射されるスミス・パーセル光のピーク波長を $V=40\text{ kV}$ - $\theta=90^\circ$ と $V=30\text{ kV}$ - $\theta=80^\circ$ の条件で式 (11) より算出した。波長 $1.2\sim 1.6\text{ }\mu\text{m}$ の発光は、表 2 の回折格子 I からの $n=1$ 次のスミス・パーセル光の予測波長とほぼ一致した。回折格子 II からの発光もあるが、次数 $n=2$ は $2.4\sim 2.58\text{ }\mu\text{m}$ 、 $n=3$ は $1.6\sim 1.72\text{ }\mu\text{m}$ と推定される。したがって、図 12 で観測された $1.8\sim 2.2\text{ }\mu\text{m}$ の発光はスミス・パーセル放射光とは別の原理に基づく発光であると判断した。

図 13 には Bernado Laks らの解析法により見積った周期 500 nm の銀回折格子に SPP 発生させるための電子加速電圧と発光波長の関係を実線で示した。回折格子の形状は $\sin$ 関数とし、深さ h をパラメータとした。●印は図 12 の実験における $1.8\sim 2.2\text{ }\mu\text{m}$ 帯でのピーク波長である。実験値は理論予測とはほぼ一致した。したがって、 $1.8\sim 2.2\text{ }\mu\text{m}$ 帯での発光は、銀回折格子上の表面プラズモン発生が関与した発光であると判断した。上記のように電子ビームの加速電圧を変えるだけで、発光波長を可変できることは確認できた。しかしながら、上記の発光が電子ビームの進行方向に対して逆方向に進む SPP が関与しているかどうかについては現時点では実験で実証できていない。また、発光強度

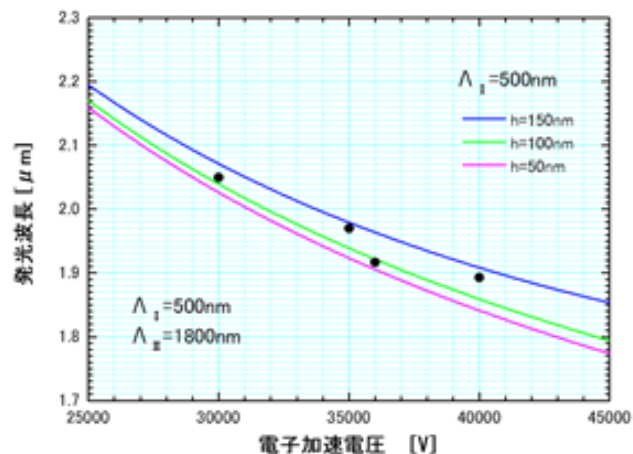


図 13 実測した電子加速電圧と発光波長の関係

表 2 回折格子 I と II から発生するスミス・パーセル放射光波長の計算値

	$V=40\text{ kV}$ $\theta=90^\circ$		$V=30\text{ kV}$ $\theta=80^\circ$	
	回折格子 I	回折格子 II	回折格子 I	回折格子 II
n	(μm)	(μm)	(μm)	(μm)
1	1.337	4.812	1.436	5.169
2	0.668	2.406	0.718	2.584
3	0.446	1.604	0.479	1.723
4	0.356	1.203	0.359	1.292

についてはスミス・パーセル放射光強度とほぼ同程度か、実験条件によっては幾分強くなる程度であった。上記実験では、電流値 $6\text{ }\mu\text{A}$ 、ビーム直径 $200\text{ }\mu\text{m}$ 、電流密度 200 A/m^2 程度の電子ビームを使用した。より電流密度の高い電子ビームを利用する必要があると思われる。また、回折格子の深さを深くして最適化を図ることや回折格子形状と光出力強度の相関なども含め、高出力化への課題が残った。

5. まとめ

金属回折格子上の表面プラズモンと真空中を走行する電子ビームを利用した新しい光源を提案し、提案した動作原理に基づく光放射を波長 $1.9\text{--}2.0\text{ }\mu\text{m}$ 帯で観測した。

謝辞：この研究は、科学研究費助成事業・基盤研究 (C) の助成を受けて行われたものである。

文 献

- [1] Y. Kuwamura, M. Yamada, R. Okamoto, T. Kanai and H. Fares, "Optical emission from a high-refractive-index waveguide excited by a traveling electron beam," J. Appl. Phys. 104, 103105, (2008)
- [2] B. Laks, D. L. Mills and A. A. Maradudin, "Surface polaritons on large-amplitude gratings," Phys. Rev. B, 23, 10, pp.4965-4976, (1981)
- [3] S. J. Smith and E. M. Purcell, "Visible Light from Localized Surface Charges Moving across a Grating," Phys. Rev. 92, pp.1069, (1953)
- [4] P. M. van den Berg, "Smith-Purcell radiation from a line charge moving parallel to a reflection grating," J. Opt. Soc. Am. 63, pp.689-698, (1973)