

電子線による誘電体中の金属ナノ構造の局在プラズモンの励起と光放射

Excitation and Light Emission of Localized Plasmons for Metal Nanostructures in Dielectrics by Electron Beams

東大院工 ○ 市川 昌和

Univ. Tokyo, ○ Masakazu Ichikawa

E-mail: ichikawa@ap.t.u-tokyo.ac.jp

本講演では、局在プラズモンの理論[1, 2]を用いて、電子線による誘電体中の金属ナノ構造の局在プラズモン励起と、それに伴う光放射について考察した結果を報告する。

電磁場の遅延効果を考慮し、乱雑位相近似 (RPA)における高周波数 (プラズモン周波数領域) 条件において、有効スカラーポテンシャル $\varphi_{\text{eff}}(\mathbf{r}, \omega)$ と外部スカラーポテンシャル $\varphi_{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega)$ は、金属ナノ構造中の局所電子密度を $n(\mathbf{r}_1)$ 、誘電体の局所電気感受率を $\chi_d(\mathbf{r}_1, \omega)$ 、 $\mathbf{E}(\mathbf{r}_1, \omega)$ を Lorentz ゲージの電場とすると、以下の積分方程式を満たす[1, 2]。

$$\varphi_{\text{eff}}(\mathbf{r}, \omega) = \varphi_{\text{ext}}(\mathbf{r}, \omega) + \int d\mathbf{r}_1 G_0(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, \omega) \rho(\mathbf{r}_1, \omega), \quad \because \rho(\mathbf{r}_1, \omega) = \nabla \cdot \left\{ \left[\frac{e^2 n(\mathbf{r}_1)}{m_e \omega^2} - \chi_d(\mathbf{r}_1, \omega) \right] \mathbf{E}(\mathbf{r}_1, \omega) \right\}.$$

ここで、 $G_0(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, \omega)$ は誘電体中の Helmholtz の方程式を満たす遅延 Green 関数である。 $\rho(\mathbf{r}_1, \omega)$ は、局在プラズモンと誘電体による誘起電荷密度である。この誘起電荷密度を用いると電気双極子モーメントは、 $\mathbf{p}(\omega) = \int \mathbf{r}_1 \rho(\mathbf{r}_1, \omega) d\mathbf{r}_1$ で与えられる。さらに、この電気双極子モーメントによる電磁場を求め、ポインティングベクトルを計算することによって、金属ナノ構造からの光放射強度 (単位立体角、単位振動数当たりのフォトン数) は、以下のように与えられる[3]。

$$I_{\text{ph}}(\Omega, \omega) = \frac{1}{4\pi^2 c_d^3 \hbar \omega} \left| \mathbf{e}_r \times \ddot{\mathbf{p}}(\omega) \right|^2.$$

ここで、 $\ddot{\mathbf{p}}(\omega)$ は、ナノ構造の電気双極子モーメントの時間に関する 2 階微分、 $\mathbf{e}_r$ は観測方向の単位ベクトル、 c_d は誘電体中の光速である。準静的近似において、平面波の電子線が半径 a の金属ナノ球に z 方向に速度 v で入射する時の有効スカラーポテンシャル $\varphi_{\text{eff}}(\mathbf{r}, \omega)$ を極座標を用いて求め、上式により光放射強度を計算すると、以下の結果が得られる。

$$I_{\text{ph}}(\Omega, \omega) \propto \sin^2 \theta \left| \frac{\omega_p^2 / (4\pi) + \omega^2 \chi_d^0(\omega)}{1 + 2\epsilon_d^0(\omega)} \right|^2 \int_0^\infty k_\perp dk_\perp \left\{ \frac{j_1 \left(a \sqrt{k_\perp^2 + (\omega/v)^2} \right)}{k_\perp^2 + \left[1 - (v/c_d)^2 \right] (\omega/v)^2} \right\}^2 \frac{(\omega^3 + \omega \Gamma^2)}{\left[\omega^2 - \omega_p^2 / \left[1 + 2\epsilon_d^0(\omega) \right] \right]^2 + \omega^2 \Gamma^2}.$$

ここで、 θ は双極子モーメントの方向と観測方向の間の角度、 ω_p はバルクプラズモン振動数、 $\epsilon_d^0(\omega)$ は誘電体の誘電関数、 j_l は $l=1$ の球面ベッセル関数、 $k_\perp$ は電子線の入射方向に垂直な波数、 Γ はプラズモンの減衰振動数である。 $\left[1 - (v/c_d)^2 \right]$ の項は電子線の相対論効果を示しており、電子線の速度が光速に近づくと、表面プラズモンによる前方非弾性散乱の寄与 ($k_\perp \approx 0$) が大きくなる事が分かる。

当日は、電子線の局在プラズモン励起による非弾性散乱と光放射との関係についても報告する。

参考文献：

- [1] M. Ichikawa; e-J. Surf. Sci. Nanotech. **16**, 329-338 (2018). [2] Jpn. J. Appl. Phys. **58**, SIIA07 (2019).
[3] M. Ichikawa; e-J. Surf. Sci. Nanotech. **12**, 431-438 (2014).