

(LNS Experiment: #2418, #2435)

## 電子ビームにより励起されたフォトニックバンドからの 共鳴光放射の観測

山本貴一<sup>1</sup>, 榊原竜一<sup>2</sup>, 矢野聡<sup>1</sup>, 瀬川勇三郎<sup>1,2</sup>, 柴田行男<sup>3</sup>,  
伊師君弘<sup>3</sup>, 蔦谷勉<sup>3</sup>, 大坂俊明<sup>3</sup>, 原高志<sup>4</sup>, 近藤泰洋<sup>4</sup>,  
宮寄博司<sup>4</sup>, 日出富士雄<sup>5</sup>, 松山正佳<sup>5</sup>, 山口修一<sup>6</sup>, 大高一雄<sup>7</sup>

<sup>1</sup>理化学研究所フォトダイナミクスセンター (980-0845 仙台市青葉区荒巻字青葉519-1399)

<sup>2</sup>東北大学大学院理学研究科 (980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉)

<sup>3</sup>東北大学多元物質科学研究所 (980-8577 仙台市青葉区片平2-1-1)

<sup>4</sup>東北大学大学院工学研究科 (980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉08)

<sup>5</sup>東北大学原子核理学研究施設 (982-0826 仙台市太白区三神峯1-2-1)

<sup>6</sup>千葉大学工学部 (263-8522 千葉市稲毛区弥生町1-33)

<sup>7</sup>千葉大学先進科学教育センター (263-8522 千葉市稲毛区弥生町1-33)

## Observation of a Resonant Light Emission from an Electron Beam Exciting a Photonic Band

K. Yamamoto<sup>1</sup>, R. Sakakibara<sup>2</sup>, S. Yano<sup>1</sup>, Y. Segawa<sup>1,2</sup>, Y. Shibata<sup>3</sup>,  
K. Ishi<sup>3</sup>, T. Tsutaya<sup>3</sup>, T. Ohsaka<sup>3</sup>, T. Hara<sup>4</sup>, Y. Kondo<sup>4</sup>, H. Miyazaki<sup>4</sup>,  
F. Hinode<sup>5</sup>, T. Matsuyama<sup>5</sup>, S. Yamaguchi<sup>6</sup>, and K. Ohtaka<sup>7</sup>

<sup>1</sup>*Photodynamics Research Center, The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN), 519-1399 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-0845*

<sup>2</sup>*Department of Physics, Graduate School of Science, Tohoku University, Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8578*

<sup>3</sup>*Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577*

<sup>4</sup>*Department of Applied Physics, Advanced School of Engineering, Tohoku University, Aramaki, Aobaku, Sendai 980-8579*

<sup>5</sup>*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, 1-2-1 Mikamine, Taihaku-ku, Sendai 982-0826*

<sup>6</sup>*Graduate School of Science and Technology, Chiba University, 1-33 Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba 982-0826*

<sup>7</sup>*Center for Frontier Science, Chiba University, 1-33 Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba 982-0826*

We observed directional light when a high-energy (150 MeV) electron beam runs just above a photonic crystal. The relation between the momentum and the energy of the emitted photons strongly suggests that the observed light is generated by the umklapp scattering process that changes the evanescent waves emitted by the electron beam into observable ones. By comparing the observed

spectra and theoretically calculated spectra, we found that generated photons excite the photonic band modes making them observable as enhanced fine structures in the emission spectra.

フォトニック結晶の表面近傍を電子が等速度で通過するとき、特定方向に強い光放射を観測した。放射された光の運動量とエネルギー間の関係は、この光がフォトニック結晶によるウムクラップ散乱により、電子から放射された減衰波が進行波となったものであることを示している。実験により得られた光放射スペクトルと、理論計算により求まる光放射スペクトルとを比較することにより、スペクトルにみられる鋭い微細構造は、フォトニックバンドモードが共鳴的に励起された際に放射される光に対応することがわかった。

## § 1. はじめに

近年、新しい光学素子への応用をも視野に入れ、フォトニック結晶の研究が盛んにおこなわれている。フォトニック結晶とは、光の波長のオーダーで誘電物質を周期的に配置した多次元構造体である。フォトニック結晶の物理を論じる際に重要なのは、フォトニックバンドギャップ、及びフォトニックバンドという概念である。あるエネルギー領域の光はフォトニック結晶中を全く伝播できない。このエネルギー領域をフォトニックバンドギャップと呼ぶ。また、フォトニックバンドギャップに対応するエネルギー外にある光は、あるエネルギーと運動量の分散関係を満たしながらフォトニック結晶中を伝播する。この分散関係をフォトニックバンドと呼ぶ[1-3]。フォトニック結晶の研究で重要な目標の一つとされているのは、効率の良い発光素子への応用である。この分野の研究の初期段階において、フォトニックバンドギャップ中に自然放出エネルギーをもつ発光材料とフォトニック結晶とを組み合わせることで、光の自然放出を(理想的には完全に)抑制し、そのエネルギー損失分をなくした極めて発光効率の高いレーザ、LEDを実現できる可能性があることが指摘された[1]。しかし、そのような発光素子の実現に欠かせない、3次元方向すべてにフォトニックバンドをもつようなフォトニック結晶を実際に作成することは極めて困難であり、自然放出光を抑制した高効率発光素子は未だ実現されていない。しかし、フォトニック結晶の高効率発光素子への応用はレーザ、LEDに限らない。本稿では、フォトニック結晶を電子線から光を発生させる一種の変換器として使用する[4,5]ことで高効率な光源を実現しようとする試みによりこれまでに得られた知見を報告する。

## § 2. 等速度運動する荷電粒子からの光放射

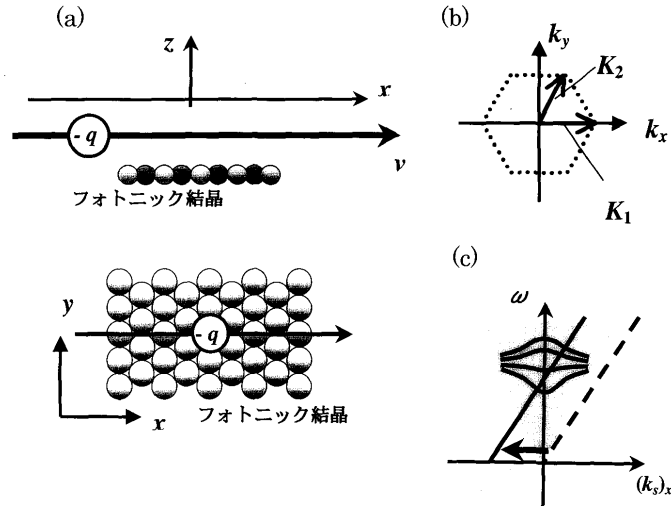
等速度で  $x$  方向に運動する電子は減衰波(エバネッセント波)を放出している。その減衰波の波数ベクトルは、

$$k_i = (k_x, q_y, \Gamma_i) \quad (1)$$

で定義される。ここでは  $z$  方向をフォトニック結晶と垂直な方向としている(第1図(a))。ここで、 $k_i$  の  $x$  成分は常に  $k_x = \omega/v$  の一定値をとる。ここで、 $\omega$  は放射された光の角周波数、 $v$  は運動している電子の速度である。 $\Gamma_i$  は減衰波の  $z$  方向への伝播を支配する量であり、

$$\Gamma_i = \sqrt{\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2 - q_y^2} = \sqrt{\frac{\omega^2}{c^2} - \frac{\omega^2}{v^2} - q_y^2} \quad (2)$$

と表される。電子の速度  $v$  は常に光速  $c$  より小さいので、 $\Gamma_i$  は常に純虚数であり、電子から放射される光が減衰波であることの説明となっている。実際の減衰波は、(1)の波数成分をもつ波の  $q_y$  に関する和で表される。この減衰波が、ごく近傍にある周期構造により、一種のウムクラップ散乱をうけることで遠方の観測点からも観測可能な光となる。ウムクラップ散乱過程で減衰波の波数ベクトルは周期構造の逆格子ベクトルの



第1図 (a)フォトニック結晶として用いた、2次元三角格子状に並べた  $\text{Si}_3\text{N}_4$  球。実線矢印で示してあるのは電子の軌道で、 $x$  方向を電子の進む向きとしている。 $z$  軸はフォトニック結晶の面に垂直にとる。(b)本研究で用いたフォトニック結晶の2つの逆格子ベクトル ( $K_1$  及び  $K_2$ )。ブリルアンゾーンは点線で囲ってある領域に対応する。(c)  $(k_s)_x$ - $\omega$  平面内における散乱過程の模式図。等速度直線運動する電子から放出された減衰波の分散直線 (破線) がウムクラップ散乱 (実線矢印) をうけ、光円錐 (影をつけた部分) 内部にはいり、 $H_{m,n}$  線 (実線) となる (本文参照)。実曲線はフォトニックバンドを模式的に表す。

線形和分だけシフトする。本実験に使用したフォトニック結晶の結晶格子を例にとると、球で構成された2次元六方最密構造では逆格子ベクトルは

$$K_1 = \frac{4\pi}{d\sqrt{3}}(1,0) \equiv (K_{1x}, K_{1y}) \quad (3)$$

及び、

$$K_2 = \frac{4\pi}{d\sqrt{3}}\left(\frac{1}{2}, \frac{\sqrt{3}}{2}\right) \equiv (K_{2x}, K_{2y}) \quad (4)$$

と表される (第1図(b))。ここで、 $d$  はフォトニック結晶を構成する球の直径である。したがって、ウムクラップ散乱を受けたあとの進行波の波数ベクトルは、整数  $m$  及び  $n$  を使って

$$k_s = (k_x + mK_{1x} + nK_{2x}, q_y + mK_{1y} + nK_{2y}, \Gamma_{mn}) \quad (5)$$

と表される。ここで、 $\Gamma_{mn}$  は

$$\Gamma_{mn} = \sqrt{\frac{\omega^2}{c^2} - \left(\frac{\omega}{v} + mK_{1x} + nK_{2x}\right)^2 - (q_y + mK_{1y} + nK_{2y})^2} \quad (6)$$

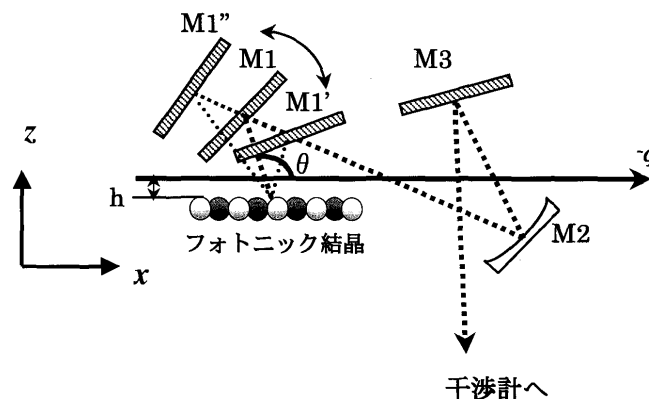
と表される。運動量-エネルギー空間 ( $(k, \omega)$  空間) において、このメカニズムは、光円錐の外側にある減衰波の分散平面を  $mK_1 + nK_2$  だけシフトして光円錐内側にもってくることに対応する (第1図(c))。以下の便宜のために、今後  $mK_1 + nK_2$  だけシフトした減衰波の分散平面を、散乱後の進行波を定義するのに使用した整数の組  $m$  及び  $n$  を使って  $H_{m,n}$  平面と呼ぶことにする。

もし、周期構造物として、金属でできた回折格子を使用するなら、上述の光放射効果はスミス・パーセル効果として知られたものとなる[6]。スミス・パーセル効果により放射された光 (スミス・パーセル放射光, SPR) を光源に応用しようとする試みもすでに何例か報告がある[7,8]。このような金属回折格子を使う古典的な SPR と比べ、フォトニック結晶を使用した場合は、強い閉じ込めを受けたフォトニックバンドモード

の共鳴励起を使える分、質と効率のより良い光源となりうるはずである[4,5]。フォトリックバンドモードの共鳴励起による、非常に鋭く、強い強度をもつピーク状の構造が放射スペクトルにあらわれるであろうことは、理論的に予測されている[4,5]。

### § 3. 実 験

フォトリックバンドモードを共鳴的に励起した際に放出される光を観測すべく、核理研に第2図のような測定系を準備した。フォトリック結晶近傍を、電子線形加速器から放出された、エネルギー 150MeV の電子が通過する。ビームの平均電流は  $1.4 \mu\text{A}$  であるため、電子ビーム 1 バンチ当りの電子数は約  $1.1 \times 10^8$  個となる。電子ビームの断面積は、約  $5.8 \times 5.3 \text{mm}^2$  であった。ビームの高さはフォトリック結晶から 10mm に固定されている。放射された光は、第2図点線のような光学系を通して、マーチン・パプレット型の干渉分光計に導かれ、分光される。干渉計への光学軸を変えることなく、平面鏡 M1 を動かすことにより、放射角度 ( $\theta$ ) 依存性が測定できるようになっている。実際の測定では、 $\theta$  は  $60^\circ < \theta < 90^\circ$  の範囲で動かして測定した。干渉分光計の分解能は 2.4 GHz である。実験に用いたフォトリック結晶は 2次元単層に並べた  $\text{Si}_3\text{N}_4$  球であり、2次元六方最密構造をとる (第1図 (a))。フォトリック結晶を構成する  $\text{Si}_3\text{N}_4$  球の直径は 1/8 インチ (約 3.2mm) であるため、このフォトリック結晶はミリ波領域の光に対応するものとなっている。 $\text{Si}_3\text{N}_4$  は、ミリ波領域で比較的大きな誘電率 ( $\epsilon = 8.67$ ) をとる。実験に使用したフォトリック結晶が高い精度をもつということは、以前に行った透過率測定の実験により実証済みである[9-11]。

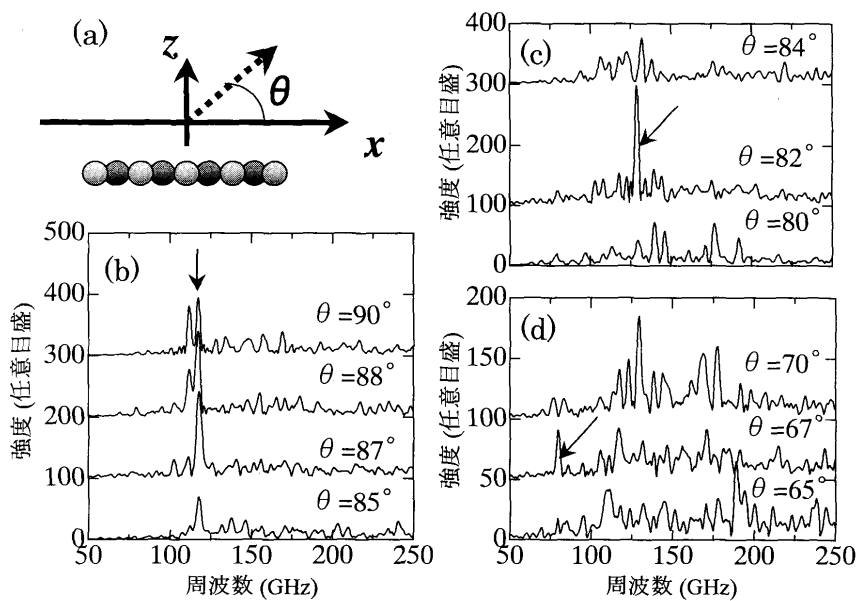


第2図 実験に用いた光学系。M1, M3: 平面鏡, M2: 凹面鏡, h: ビームの高さ。M1 の位置は、M1 から M1' まで変えることができる。

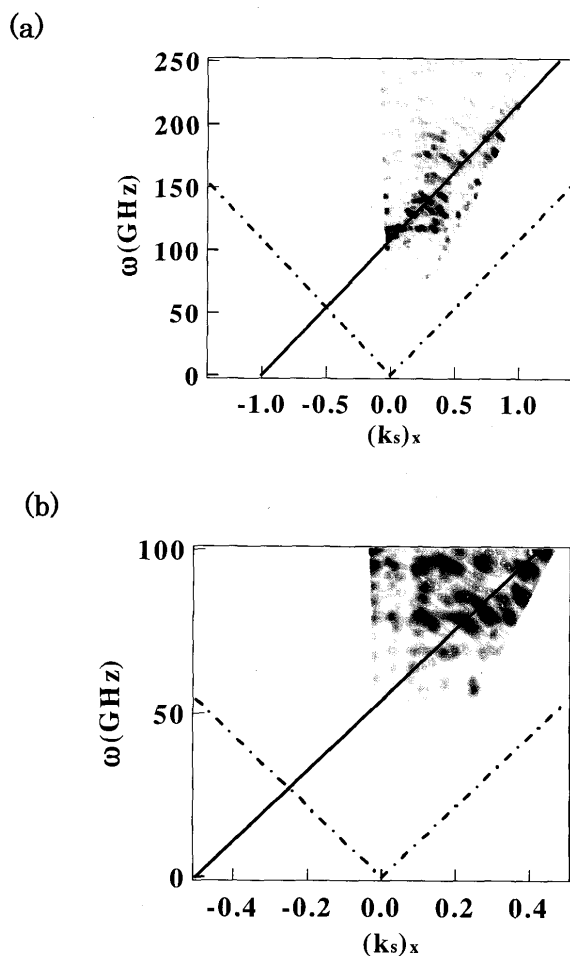
### § 4. 実験結果と考察

第3図(b)-(d)に、放射された光のスペクトルの放射角度  $\theta$  依存性を示す。放射スペクトルには、ピーク幅 (FWHM) 約 4GHz の鋭いピーク構造が数多くみられる。つまり、ピーク構造に対応する放射光は単色性の強いものであることを示している。さらに、注目すべきところはこの光放射ピーク強度の強い  $\theta$  依存性である。例えば、第3図(b)-(d)に矢印で示してあるピークは、角度変化  $5^\circ$  の間に大きく強度が変わることがわかる。

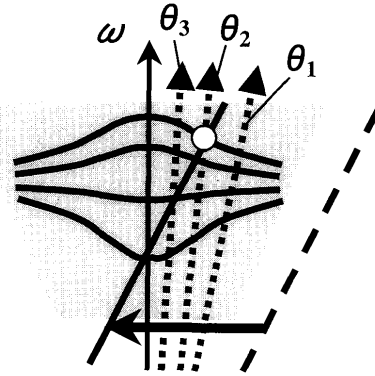
放射スペクトル中に見られるピーク構造に対応する光放射の起源を探るため、放射角度  $\theta$  から放射光の運動量ベクトル  $k_s$  の  $x$  成分 ( $k_{s,x}$ ) を求め、 $(k_{s,x} - \omega)$  平面内での光放射強度分布を求めた。 $\theta$  から  $(k_{s,x})$  を求める際には、関係式



第3図 放射角度  $\theta$  の定義(a), 及び光放射スペクトルの放射角度 ( $\theta$ ) 依存性 ((b)-(d)). (b)-(d)中の矢印で示してある放射ピークは,  $(k_s)_x$ - $\omega$  平面内で  $H_{m,n}$  線上にあるピークである。



第4図 (a)  $(k_s)_x$ - $\omega$  平面における, 放射光強度の分布図。一点鎖線は光円錐の境界線を示す。実線は  $H_{1,0}$  線である。(b)は強度分布図の一部(100GHz以下)を示す。実線は  $H_{0,-1}$  ( $H_{-1,1}$ ) 線を示している。



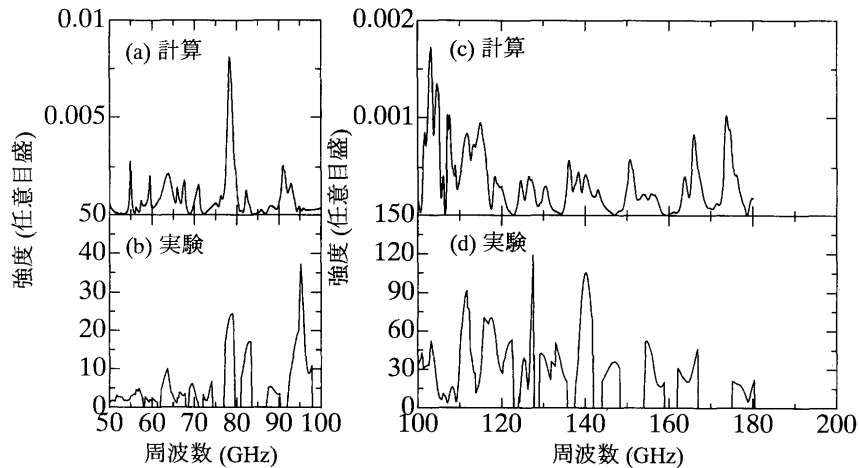
第5図 放射ピーク強度の強い $\theta$ 依存性を説明する模式図。点線矢印は $(k_s)_x - \omega$ 平面内において、各 $\theta$  ( $\theta_1 - \theta_3$ )の値に対応する $\theta$ 一定スペクトルに相当する。等速度直線運動する電子から放出された減衰波の分散直線(破線)がウムクラップ散乱(実線矢印)を受け、光円錐(影をつけた部分)内部にはいった $H_{m,n}$ 線(実線)、フォトニックバンド(実曲線)、及び点線矢印がすべて交わる点を白丸で示す。

$$(k_s)_x = \frac{\omega}{c} \cos \theta \quad (7)$$

を使った。このようにして求めた強度分布図を第4図(a)及び(b)に示す。ただし、第4図(b)は、第4図(a)の分布図の100GHz以下の部分を拡大したものである。強度の強い放射は、 $H_{1,0}$ 平面(の $(k_s)_y = 0$ による断面、以下の便宜上これを $H_{1,0}$ 線と呼ぶ)、あるいは $H_{0,1}$ ( $H_{1,1}$ )線上周辺に多く分布していることがわかる。これら $H_{m,n}$ 線上に分布している放射ピークは、第2節で紹介したメカニズムによりフォトニック結晶により生成された光に対応する。第3図(b)–(d)に矢印で示しているものは、ちょうど $H_{m,n}$ 線上に分布している放射ピークに対応している。放射ピークの中には、 $H_{m,n}$ 線上に分布していないものも見られるが、これらについては現時点で起源を特定できないので以下では議論しないことにする。

次に、 $H_{m,n}$ 線上に分布している放射ピーク強度の強い $\theta$ 依存性の起源について議論しよう。このような強い $\theta$ 依存性は、その放射ピークが $(k_s)_x - \omega$ 平面内でただ単に $H_{m,n}$ 線上に分布しているというだけでは起こらない。金属回折格子を使ったSPRにおいては、Wood異常による放射強度の角度変化というものがみられるのだが[12,13]、今回われわれが観測したような強い $\theta$ 依存性よりは小さい。われわれが放射ピーク強度の観測した強い $\theta$ 依存性は、実は対応する放射光がフォトニックバンドモードの共鳴的な励起により生成されたものであるという証拠となっているのである。この説明を模式的に示したのが第5図である。 $(k_s)_x - \omega$ 平面内においては、 $\theta$ を固定して測定したスペクトルは、図中点線矢印で示したものに相当する。共鳴的に増強された光放射は、 $H_{m,n}$ 線がフォトニックバンドを横切るたびに引き起こされる。ただし、われわれが観測できるのは、あくまで $\theta$ を固定して測定するスペクトルとしてであるので、 $(k_s)_x - \omega$ 平面内では、図中点線矢印、 $H_{m,n}$ 線、及びフォトニックバンドが1点で交わるときに、フォトニックバンドの共鳴励起による鋭い放射ピークが観測できることとなる。もし $\theta$ の値が変化すればこの条件が満たされなくなるため、観測される放射光強度も急速に低下することになる。

観測されている放射ピークが、もし上述のようにフォトニックバンドモードの励起によるものであるのなら、放射スペクトルはフォトニックバンドの構造を反映しているはずである。この点を確認するため、ベクトルKKR法によるフォトニックバンド計算[14–16]に基づいて、放射スペクトルを計算した。計算した放射スペクトルは $(k_s)_x - \omega$ 平面内で2本の $H_{m,n}$ 線、つまり $H_{0,1}$ ( $H_{1,1}$ )線上(第6図(a))及び $H_{1,0}$ 線上(第6図(c))に沿ったものを示している。100GHz以下の比較的低い周波数領域では計算したスペクトルと観測されたスペクトルのピーク位置の一致はよく、この周波数領域での放射光スペクトルは、フォトニックバンド



第6図 実験((b)及び(d))と理論計算((a)及び(c))により求めた放射強度スペクトル。(a)及び(b)は、 $H_{0,-1}$  ( $H_{-1,1}$ ) 線に沿った放射強度スペクトル、(c)及び(d)は $H_{-1,0}$ 線に沿った放射強度スペクトルである (本文参照)。

の構造を反映していることを示している。一方、100GHz以上の高周波数領域に目をむけてみると、100GHz以下の低周波数領域に比べて定量的な一致は悪くなっているが、計算したスペクトルと観測されたスペクトルとは定性的には合っており、この領域でも放射光ピークは、フォトニックバンドモードの共鳴励起により生じた光に対応するものであることを裏付けている。

## § 5. まとめ

われわれは、フォトニックバンドモードの共鳴励起により増強された光放射をはじめ観測した。観測された放射スペクトルは、鋭いピーク状の構造により特徴づけられており、その強度の強い放射角度依存性と、計算された放射スペクトルと観測された放射スペクトルとの一致により、フォトニックバンドモード由来であることが裏付けられる。

本研究は、文部科学省科学研究費補助金及び理化学研究所基礎科学特別研究員制度の支援により行われたものである。

## 参 考 文 献

- [1] E. Yablonovitch : Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 2059.
- [2] E. Yablonovitch and T.J. Gmitter : Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1950.
- [3] E. Yablonovitch : J. Phys. Condens. Matter. **5** (1993) 2443.
- [4] K. Ohtaka and S. Yamaguti : Optics and Spectroscopy **91** (2001) 506.
- [5] K. Ohtaka and S. Yamaguti : Optics and Quantum Electronics **34** (2002) 235.
- [6] S.J. Smith and E.M. Purcell : Phys. Rev. **92** (1953) 1069.
- [7] J. Urata, M. Goldstein, M.F. Kimmitt, A. Naumov, C. Platt, and J.E. Walsh : Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 516.
- [8] Y. Shibata, S. Hasebe, K. Ishi, S. Ono, M. Ikezawa, T. Nakazato, M. Oyamada, S. Urasawa, T. Takahashi, T. Matsuyama, K. Kobayashi, and Y. Fujita : Phys. Rev. E **57** (1998) 1061.

- [9] K. Ohtaka, Y. Suda, S. Nagano, and T. Ueta, A. Imada, T. Koda, J. S. Bae, K. Mizuno, S. Yano, and Y. Segawa : Phys. Rev. B **61** (2000) 5267.
- [10] S. Yano, Y. Segawa, J.S. Bae, K. Mizuno, H. Miyazaki, K. Ohtaka, and S. Yamaguchi : Phys. Rev. B **63** (2001) 153316.
- [11] T. Kondo, M. Hangyo, S. Yamaguti, S. Yano, Y. Segawa, and K. Ohtaka : Phys. Rev. B (in press) .
- [12] O. Haerberle, P. Rullhusen, J.-M. Salome, and N. Maene : Phys. Rev. **E49** (1994) 3340.
- [13] O. Haerberle, P. Rullhusen, J.-M. Salome,s and N. Maene : Phys. Rev. **E55** (1997) 4675.
- [14] K. Ohtaka : Phys. Rev. **B19** (1979) 5057.
- [15] K. Ohtaka : J. Phys. **C13** (1980) 667.
- [16] K. Ohtaka and Y. Tanabe : J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 2265.