

[共同研究成果]

メタマテリアルにおける有効光学定数の決定法とその応用

岩長 祐伸

東北大学 大学院理学研究科 物理学専攻

本稿では、メタマテリアルにおける有効光学定数の抽出法として開発した二複素反射率法 (TCRM, Two-Complex Reflectivity Method) について解説する。そのあと、TCRM コードの SX-7 上での運用によって見出した結果、光学周波数における低損失な磁気共鳴について紹介する。

1. はじめに

1.1. メタマテリアルについて

メタマテリアルという概念は、2003年にマイクロ波領域での負の屈折現象が実現されたことを契機に一躍脚光を浴びるようになった [1]。通常物質 (固体結晶など) をマテリアルと呼ぶが、メタマテリアルは人工的に結晶を模して作った周期構造体である。通常物質では発現しない光機能 (負の屈折率など) を実現することを目指して、現在世界規模でしのぎをけずりながら、精力的に研究されている。

昨年の SENAC で報告したフォトニック結晶は光の波長と同程度の周期構造を持っていた [2]。光の波長が構造の周期よりも長い場合をメタマテリアルとみなして、新たな光機能を探索する。このときに重要な点は、構造体の微細構造によって生じる不均一な電磁波から平均的な光学応答を抽出することである。ここで、平均的な光学応答とは、構造体からの反射光や透過光 (光学応答) を平面波で近似することを意味している。それによって、媒体を有効光学定数 (有効誘電率  $\epsilon_{\text{eff}}$ 、有効透磁率  $\mu_{\text{eff}}$ ) によって表すことができる。図 1 はその様子を模式的に示している。

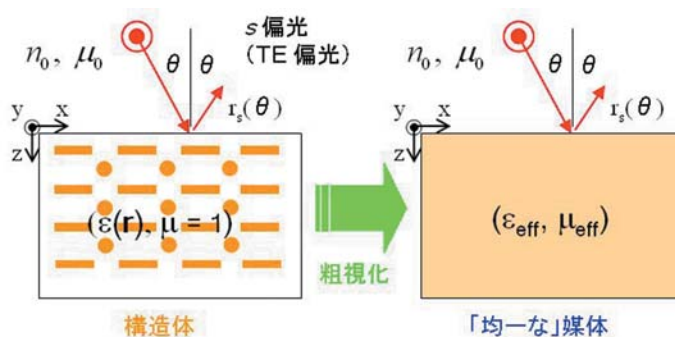


図 1. 構造体の粗視化と有効光学定数

## 1.2. 有効光学定数の抽出について

メタマテリアルは周期構造体であるから、フォトニック結晶と同じように線形光学応答を計算できる [2]。したがって、昨年開発した散乱行列法を用いたコードを活用して、複素反射率  $r$ 、複素透過率  $t$  を SX-7 上で計算する方針をとった。

今回は有効光学定数の物理学的な意味を明確にするために、十分に厚いメタマテリアルを解析することにした。この場合、複素透過率  $t=0$  になる。光学応答から有効光学定数を抽出する手順を図 2 に示している。通常、光学定数から光学応答を算出するのであるが、その逆の手順を踏むことになる。

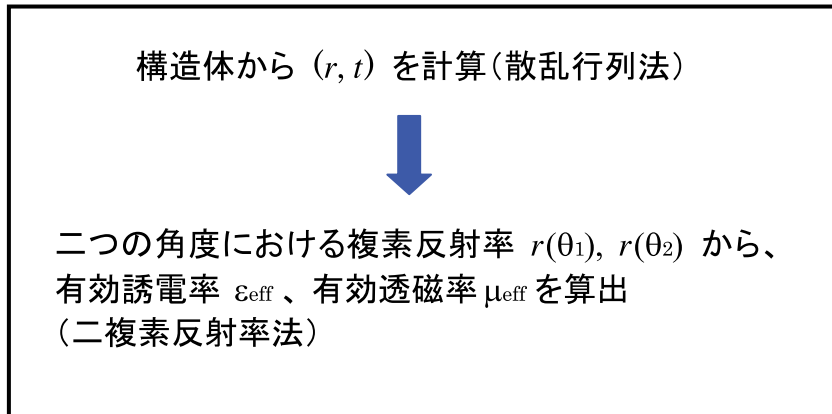


図 2. 線形光学応答から有効光学定数を抽出するスキーム

図 2 のように、散乱行列法のコードに有効光学定数を抽出するアルゴリズムを組み合わせることによって、メタマテリアルの特性を明らかにする。次節では、二複素反射率法について解説する。

## 2. 二複素反射率法 (TCRM)

この節では、実際にどのように有効誘電率、有効透磁率を算出するかを示す。基本的には、電磁波に対して成り立つ Maxwell 方程式を満たすように複素反射率から有効光学定数を「逆算」すればよいのであるが、TCRM は最近導入した方法 [3] で、まだ広く知られていないので、すこし丁寧に説明したい。(なお、この節の説明はやや技術的であるので、電磁気学に十分詳しい方や数値計算の結果を早く知りたい方は、この節をスキップして次節に移られてもよい。)

これまで有効光学定数と呼んできたが、より正確にはこれらはテンソル量である。したがって、等方的、1 軸性、2 軸性の媒体にたいしては、つぎのように書くことができる。

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{eff}} = \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix}, \quad \boldsymbol{\mu}_{\text{eff}} = \begin{pmatrix} \mu_x & 0 & 0 \\ 0 & \mu_y & 0 \\ 0 & 0 & \mu_z \end{pmatrix} \quad (1)$$

等方的な場合は  $xyz$  成分が等価、つまり  $\varepsilon_x = \varepsilon_y = \varepsilon_z$ 、 $\mu_x = \mu_y = \mu_z$  であり、1軸性のときは  $xy$  成分に関して等価、 $\varepsilon_x = \varepsilon_y$ 、 $\mu_x = \mu_y$  となる。有効誘電テンソル  $\boldsymbol{\varepsilon}_{\text{eff}}$ 、有効透磁テンソル  $\boldsymbol{\mu}_{\text{eff}}$  をこのように定義することによってかなり広範な種類の媒体を解析することができる。

いま、線形光学過程を考えていて、式(1)のように軸性媒体を対象とするので、電束密度  $\mathbf{D}$  と磁束密度  $\mathbf{B}$  は電場ベクトル  $\mathbf{E}$ 、磁場ベクトル  $\mathbf{H}$  を使って、以下のように表される。

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \boldsymbol{\varepsilon}_{\text{eff}} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (2)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 \boldsymbol{\mu}_{\text{eff}} \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) \quad (3)$$

ここで、 $\varepsilon_0$  と  $\mu_0$  は真空中の誘電率と透磁率である。

**複素反射率  $r_s$  に関する関係式の導出** 図1のように入射光が  $xy$  面に入射して、電場が  $y$  軸を向いているときを  $s$  偏光と呼ぶ。また入射・反射面（入射光と反射光の進行を表す波数ベクトルで張られる平面）は  $xz$  面に一致するように定め、入射角を  $\theta$  とする。このとき、メタマテリアルの中に入る屈折光成分の波数ベクトル  $\mathbf{k} = k_0 \hat{\mathbf{k}}$  を真空中の波数  $k_0$  で規格化した波数ベクトルをつぎのように  $xz$  成分のみで表すことができる。

$$\hat{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} \hat{k}_x \\ 0 \\ \hat{k}_z \end{pmatrix} \quad (4)$$

以上で用意した記号を使って、電磁場の境界条件から初等的な計算をへて、 $xy$  面における複素反射率  $r_s (= E_{r,y}/E_{in,y}$ 、 $E_{in,y}$  は入射電場の  $y$  成分、 $E_{r,y}$  は反射電場の  $y$  成分) に関するつぎの式を得る。

$$\frac{\hat{k}_z(\theta)}{\mu_x} = \frac{n_0 \cos \theta}{\mu_0} \frac{1 - r_s(\theta)}{1 + r_s(\theta)} \quad (5)$$

この式を  $r_s$  について解いた式はフレネルの反射公式と呼ばれることもある。とくに、 $\hat{k}_z(0)$  は  $z$  軸方向の有効屈折率を表すことに留意してほしい。

**分散方程式の導出** 有効光学定数にはもう一つ条件となる式が存在する。それが分散方程式であり、以下のように Maxwell 方程式から直接導かれる。Maxwell 方程

式は式(2), (3)のほかに、つぎの2つがある。

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (6)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \frac{\partial \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (7)$$

ここで、先にも述べたように平面波解  $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t)$  を持つと仮定すると、式(6), (7) は以下のように書きかえられる。

$$i\mathbf{k} \times \mathbf{E} = i\omega \mathbf{B} \quad (8)$$

$$i\mathbf{k} \times \mathbf{H} = -i\omega \mathbf{D} \quad (9)$$

式(8), (9)のベクトル  $\mathbf{E}, \mathbf{B}, \mathbf{H}, \mathbf{D}$  はいずれも  $(\mathbf{r}, t)$  に依存しない。

ここで、1つ注意しておきたい。式(8), (9)のように平面波解を持つとすると、非局所応答を含む、より一般的な誘電率、透磁率の性質を  $\epsilon_{\text{eff}}$  と  $\mu_{\text{eff}}$  は持つことが可能になる。つまり、 $\epsilon_{\text{eff}} = \epsilon_{\text{eff}}(\omega, \mathbf{k})$ ,  $\mu_{\text{eff}} = \mu_{\text{eff}}(\omega, \mathbf{k})$  となり、この  $\mathbf{k}$  依存性を空間分散という[4]。しかし、多くの場合において空間分散は小さいかほとんど無視できるので、以下では空間分散はないものと仮定して話を進める（空間分散は本稿での主題ではないので、詳細は文献 [5] を参照願いたい）。

式(2), (9)から、式(10)が得られ、さらに  $\mathbf{H}$  に式(3)を代入して、式(11)を得る。最後に  $\mathbf{k} = k_0 \hat{\mathbf{k}}$  と  $k_0^2 = \epsilon_0 \mu_0 \omega^2$  を使うと、式(12)に至る。

$$\epsilon_{\text{eff}} = -\frac{1}{\epsilon_0 \omega} \mathbf{k} \times \mathbf{H} \quad (10)$$

$$= -\frac{1}{\epsilon_0 \omega} \mathbf{k} \times \left[ \frac{1}{\mu_0 \omega} \mu_{\text{eff}} (\mathbf{k} \times \mathbf{E}) \right] \quad (11)$$

$$= -\hat{\mathbf{k}} \times \left[ \mu_{\text{eff}}^{-1} (\hat{\mathbf{k}} \times \mathbf{E}) \right] \quad (12)$$

式(12)がゼロでない  $\mathbf{E}$  にたいして成り立つためには、式(12)を整理して得られる係数行列の行列式  $\det = 0$  でなければならない。この条件式  $\det = 0$  が一般的な分散方程式である。とくに  $\mu_{\text{eff}} = 1$  のときの分散方程式をフレネル方程式と呼ぶこともある。

いま考えている  $s$  偏光下では式(12)はつぎのようにかなり簡単な形になる。

$$\epsilon_{\text{eff}} \begin{pmatrix} 0 \\ E_y \\ 0 \end{pmatrix} = -k \times \left[ \mu_{\text{eff}}^{-1} \begin{pmatrix} -\hat{k}_z E_y \\ 0 \\ \hat{k}_x E_y \end{pmatrix} \right] = \begin{pmatrix} 0 \\ \mu_x^{-1} \hat{k}_z^2 E_y + \mu_z^{-1} \hat{k}_x^2 E_y \\ 0 \end{pmatrix} \quad (13)$$

したがって、 $s$  偏光下での分散方程式は次式で与えられる。

$$\varepsilon_y = \frac{\hat{k}_z(\theta)^2}{\mu_x} + \frac{\hat{k}_x(\theta)^2}{\mu_z} \quad (14)$$

境界条件から、 $\hat{k}_x(\theta) = n_0 \sin \theta$  である。

式(5), (14)から、

$$\frac{\varepsilon_y}{\mu_x} = \left( \frac{n_0 \cos \theta}{\mu_0} \frac{1 - r_s(\theta)}{1 + r_s(\theta)} \right)^2 + \frac{n_0^2 \sin^2 \theta}{\mu_x \mu_z}. \quad (15)$$

この式(15)から、2つの角度  $\theta_1, \theta_2$  での複素反射率  $r_s$  が数値計算または光学測定によって分かっているならば、連立方程式によって、2つの積  $\varepsilon_y/\mu_x, \mu_x\mu_z$  が一意に求まる。この一連の解析法を TCRM と呼ぶ。

つぎの節で扱う 1 軸性媒体の場合、もう一段の TCRM を行うことで、有効光学テンソルの全成分を決定できる。そのためには、入射光もふくめたすべての配置を  $(x, y, z) \rightarrow (y, z, x)$  のように循環置換すればよい。このとき、入射光は  $yz$  面に入射し、偏光は  $z$  軸と平行になる。屈折光の進行方向は  $x$  軸方向になるから、実際計算するときには、この向きに半無限に媒体が厚い（透過光が事実上 0 になるくらい厚い）構造にたいして計算する必要がある。また、入射・反射面は  $xy$  面になる。すると、式(15)で循環置換した式がそのまま使えて、2つの積  $\varepsilon_z/\mu_y, \mu_y\mu_x$  が分かる。

以上の 2 段階の TCRM によって、4つの積  $\varepsilon_y/\mu_x, \mu_x\mu_z, \varepsilon_z/\mu_y, \mu_y\mu_x$  が求まり、1 軸性媒体では  $\varepsilon_x = \varepsilon_y, \mu_x = \mu_y$  であったことを思い出すと、 $\varepsilon_x/\mu_x, \mu_x\mu_z, \varepsilon_z/\mu_x, \mu_x^2$  である。したがって、 $\mu_x, \varepsilon_x, \mu_z, \varepsilon_z$  の順に全成分が（符号を除いて）一意に決まる。符合は非共鳴の波長では  $\mu_x \approx 1$  であることを使うと定まり、ほかの成分の符号もこの符号から一意に決まる。

この節では TCRM によって、1 軸性の有効光学テンソルが決定できることを示した。つぎの節では具体的な数値計算結果について述べ、とくに磁気共鳴に注目して解説する。

### 3. 光学周波数域において磁気共鳴をもつメタマテリアル

最初に対象とする媒体について説明する。図 3 に示すように、金属・誘電体積層メタマテリアル (SMDM, Stratified Metal-Dielectric Metamaterial) であり、以降 SMDM と呼ぶ。金属としては銀、誘電体としては  $\text{MgF}_2$  (フッ化マグネシウム) を使う。これらの誘電率を文献値から採用して、現実的な計算を行った。図 3 中の灰色部分が銀、白色部分が誘電体を表している。周期は 75 nm、銀の厚さが 15 nm、誘電体の厚さが

60 nm としている。とくに断らない場合、表層の誘電体の厚さは 30 nm である。より詳細については原著論文 [3,5] を参照願いたい。1.2 節で述べたように、最初に SMDM に対して構造を取りこんだ計算をして、そこで求めた複素反射率  $r_s$  をもとに TCRM をおこなって、有効光学テンソルを決定した。

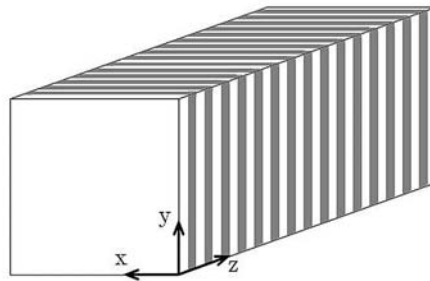


図 3. SMDM の模式図

TCRM によって得た SMDM の典型的な性質をつぎに示す。

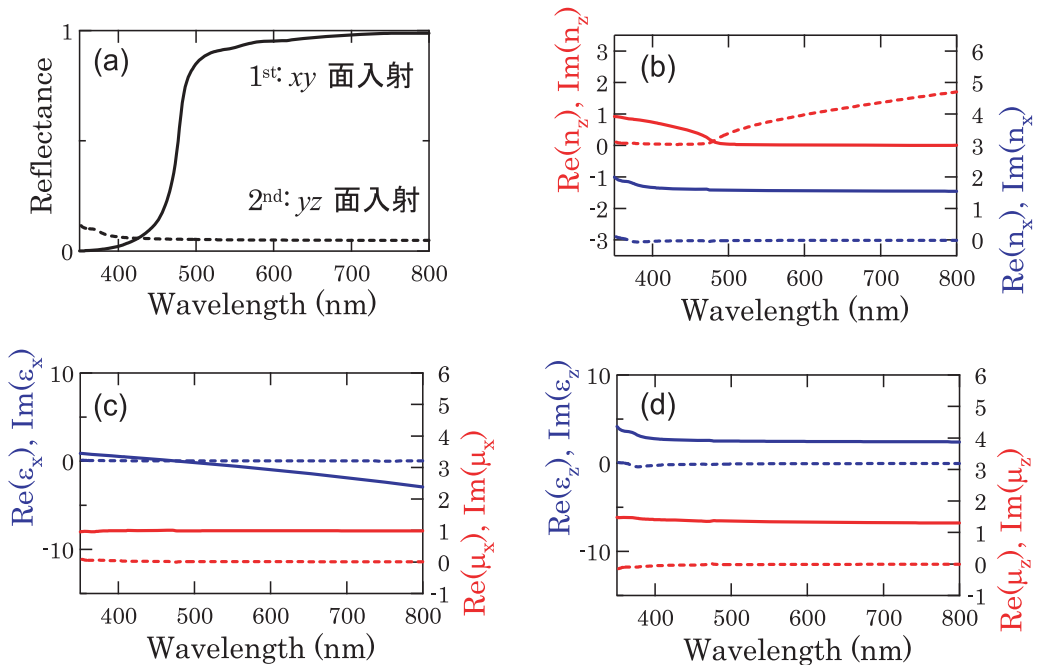


図 4. (a) 垂直入射下の反射スペクトル 実線が第 1 段階 (xy 面に入射)、点線が第 2 段階 (yz 面に入射)。(b) 有効屈折率 赤線が z 軸方向、青線が x 軸方向の屈折率を表す。赤青いずれも実部が実線、虚部が点線で示されている (下側の 2 つの図も同様である)。(c) 有効誘電テンソル (青線)、有効透磁テンソル (赤線) の x 成分 (d) z 成分

図 3 の構造から分かるように SMDM は 1 軸異方性媒体である。その光学特性が有効光学定数にも反映されることを図 4 は明瞭に示している。つまり、TCRM はうまく SMDM を解析できていると考えられる。メタマテリアルとして見たときに SMDM には、既知の固体結晶では見つかったことのない特徴がいくつか現れている。

(1) 有効光学定数から分かることをまとめると、SMDM は  $xy$  面から見ると、金属（とくに金のような色）として見えるが、 $yz, xz$  面からは  $z$  軸偏光の光を使ってみると、透明な誘電体に見える。このように SMDM は不透明な面と透明な面が共存する著しい異方性をもつ。

(2) 有効プラズマ周波数  $\omega_{p,eff}$  が長波長側に大きくシフトしている。 $\omega_{p,eff}$  は  $\text{Re}(\epsilon_x(\omega_{p,eff}))=0$  によって定義され、図 4(c) から、470 nm 付近に位置することが分かる。プラズマ周波数は金属に固有の値で、純粋な銀であれば 326 nm 付近に存在する。それを構造によって、長波長側に大きくシフトさせたことになる。これによって、SMDM が金属的な光学応答を示すのは 470 nm より長波長側に限られることになる。

(3)  $\omega_{p,eff}$  より短波長（高エネルギー）側では 360—470 nm にわたる広い波長範囲で  $z$  方向の屈折率が 1 より小さい（図 4(b) の赤線）。このように広い範囲で屈折率が 1 より小さい固体結晶は見つかったことがなく、SMDM において初めて実現する特徴的な光学状態である。

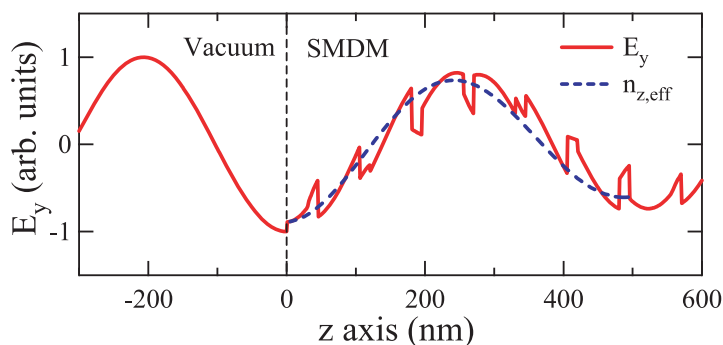


図 5. 有効光学定数による再現性の検証 実線は実際の電場分布（波長 413 nm）の計算結果、点線は有効屈折率  $n_z = 0.67 + 0.04i$  から再現された平均的な電場分布を示している。

SMDM のように屈折率が 1 より小さく、吸収損失がほとんどないということは媒体内で入射光より波長が実効的に長くなる効果を示唆する。図 5 では、実際の電場分布（実線）と有効屈折率から得られる平均的な電場分布を比べることで、その効果を検証している。図 5 では  $z < 0$  が真空領域で波長 413 nm の入射光（実線）が伝播して

くる。領域  $z > 0$  が SMDM の内部であり、屈折光成分を実線で示している。見てのとおり、平均的な電場分布を再現しており、有効光学定数による記述がよく機能していることが確認できた。

図 4 に示した可視光全域では、図 5 のように有効光学定数がうまく抽出できて、物理的に実体のある光学定数として機能している [3]。

ここまで、典型的な SMDM の光学特性を示してきたが、ここから先では SMDM で発現する磁気共鳴を紹介する。可視光から近赤外域（波長 380—2000 nm）をまとめて、光学周波数域とよぶことにする。この周波数域では、メタマテリアルによる磁気共鳴の実現が大きな課題である。スプリットリングなどの構造では磁気共鳴が出ていると考えられている [1] が、吸収損失が大きいため、光学デバイスとしては将来的な展開を考えにくい現状にある。

SMDM における磁気共鳴は、実は意外に簡単に発現する。図 6 は表層の厚さ  $d$  を変えたときの  $z$  軸方向の有効透磁率を示している。厚さ  $d = 30 \text{ nm}$  は図 4 右下のグラフと同じものを再度載せている。表層の厚さのみを薄くしていくと、透磁率が 1 より小さくなって反磁性を示すようになる。波長 470 nm 付近で透磁率が 0.5 程度というのは反磁性としては非常に大きく、同じ波長でこのような性質を示す固体結晶はこれまで見出されたことがない。この反磁性は有効プラズマ周波数  $\omega_{p,\text{eff}}$  (470 nm) につねに付随して発現することから、有効プラズマ共鳴の磁気成分と理解できる。

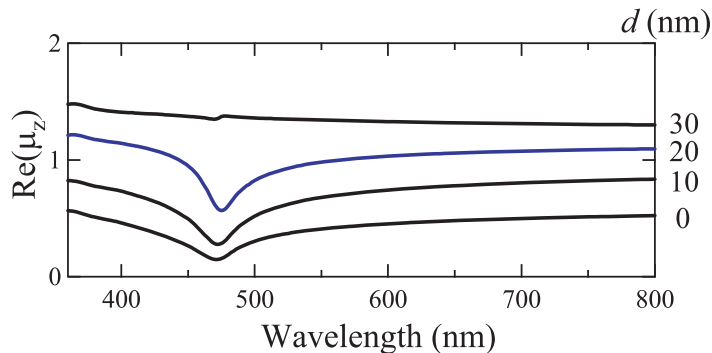


図 6. 有効透磁率 ( $z$  成分) の表層の厚さ  $d$  依存性

このような反磁性の発現を目の当たりにすると、その起源を探りたくなる。もともとの金属材料である銀は非磁性であり、バルク（大きな塊）の銀の透磁率は光学周波数では 1 である。しかし、銀と誘電体の積層メタマテリアルである SMDM においては、図 6 で示したように強い反磁性が見出された。これらの事実はパラドックスのようにも思えるが、その疑問はつぎの図 7 が解決してくれる。

図 7 では SMDM 内 ( $z > 0$ ) において多重反射も取りこんで、現実には生じる磁場分



布を数値計算して、イメージプロットしている。矢印は典型的な点における磁場の  $z$  成分の向きを示している。明らかに金属層 ( $20 < z < 35$  nm) では  $B_z$  と  $H_z$  が反対を向いている。つまり、金属層においては局所的に  $\mu_z = B_z/H_z < 0$  である。

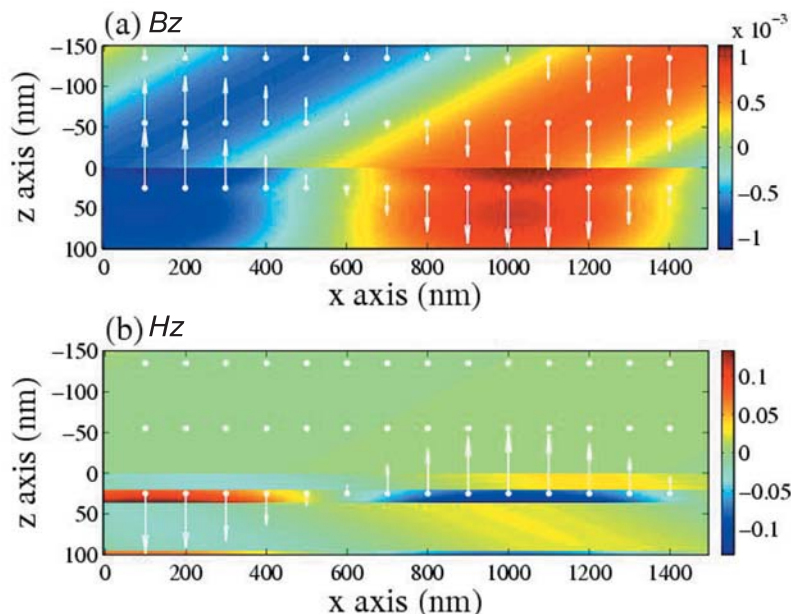


図 7. 磁場分布 (a)  $B_z$ , (b)  $H_z$  領域  $z < 0$  が真空、 $z > 0$  が SMDM 内である。見やすさのために真空中は入射光のみを示している。

金属層において  $\mu_z$  が局所的に負になることが、SMDM における有効透磁率の反磁性の起源である。このような機構によって発現する反磁性は純粹に形状 (いまの場合、厚さが有限ということ) によって電磁場の分布が空間的に大きく変えられたことに起因していて、これまで知られている局所プラズモンの共鳴にともなう磁氣的な共鳴とは質的に異なるものである。とくに、局在プラズモンを使わないことによって、問題となってきた吸収損失を著しく抑えることができている。

今回の研究によって、低損失な純磁気共鳴として、これまででない特長あるメタマテリアル SMDM を SX-7 での数値計算から見出すことができた。

#### 4. TCRM とその応用に関するまとめ

今回の共同研究をつうじて、メタマテリアルの特性をすべて抽出する TCRM コードを開発し、その応用として、光学周波数における低損失な磁気共鳴をもつメタマテリアルを見出すことができた。このようなメタマテリアルは世界中で熱望されながら、これまで見つからなかったことから、大きなインパクトを与える研究となったと考え

ている。

実際、この一連の研究は現在進行中であり、本稿の内容の一部 [5] も原著論文として学術雑誌に公刊する予定である。さらに重要なステップは、今回見出した磁気共鳴を実験的に検証して、実証することである。今後大きな展開を期待できる状況にある。

また、磁気共鳴に限らず、SMDM は 1 より小さい屈折率媒体として回折限界を超える超解像レンズとしての良い材料でもあり、顕微分光や分子の動的イメージングといった挑戦的な課題に資する新材料として、今後期待できる。

## 5. 数値計算の効率

最後に、SX-7 における数値計算の効率と要望を述べて結びとしたい。

今回の研究で計算時間の大半は散乱行列法による複素反射率の計算のために割かれていた。本稿で紹介したメタマテリアルは構造が単純であったために、ベクトル化率、並列化率ともに 90% を超えるよい効率で運用できた。

しかしながら、今後より一般的で複雑な形状のメタマテリアルを対象として視野にいれると、 $8000 \times 8000$  という大きなサイズの複素行列の演算が不可避になってくる。そのときにエルミートでない複素行列の固有値、固有ベクトルをもとめる ASL 関数が並列化できないために、計算効率が著しく低下することを懸念している。昨年も要望したように [2]、SX-7 の利便性向上のためにも、用途が多いと思われる代表的な ASL 関数の性能向上をこれからも期待したい。

## 謝辞

昨年にひきつづき、情報シナジーセンターの職員の方々には運用面で日ごろから大変お世話になり、共同研究としても支援いただきました。この場をかりて、厚くお礼を申し上げます。

## 参考文献

- [1] 解説記事として, J. B. Pendry and D. R. Smith, *Physics Today* **57**(6), 37–43 (2004).
- [2] 岩長, SENAC **39**, No. 3, 25–32 (2006).
- [3] M. Iwanaga, *Optics Letters* **32**, 1314–1316 (2007).
- [4] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, and L. P. Pitaevskii, *Electrodynamics of Continuous Media*, (Pergamon, New York, 1984), 2nd. ed.
- [5] M. Iwanaga, e-print physics/0703279.