周期多層膜メタマテリアルの設計及びその光学特性のシミュレーション解析

コース　基盤科学コース
学籍番号　１１００３７
氏名　石田　紗知子
指導教員　ルジェロ・ミケレット教授

Abstract

The purpose of this study is to demonstrate that the optical reflectivity for s-polarized light vanishes at a certain angle in a stratified dielectric-metal-dielectric metamaterial numerically.The metamaterial is composed of a periodic multilayer,whose unit layer composed of TiO_2/Ag/SiO_2.In order to calculate the reflectivity and the effective optical constant of multilayer metamaterial, I used transfer-matrix (T-matrix) method.The results exibit that the multilayer metamaterial which I made can incarnate Brewster phenomenon at the angle for s-polarized light.

要旨

1· 研究背景と目的

　近年、従来は材料の物性によって実現していた電磁気的な特性を、材料の物性に頼らず、様々な屈折率を持つ材料を組み合わせることで、メタマテリアルと呼ばれる人工光機能物質を作製しようとする研究が発展している。メタマテリアルは、波長よりも十分小さい大きさを持つ金属と誘電体からなる人工物質で、その誘電率と透磁率を制御することが可能なため、物質の屈折率自体の制御も可能となる。光の伝搬は、物質固有の屈折率により支配されるので、屈折率を制御できることは物質の光学的な特性を支配できることにもつながる。メタマテリアルによって初めて実現された有名な特性としては、負の屈折率が挙げられる。最近では、メタマテリアルを用いることにより透過率が 100 %となるためその材料で覆った物質を透明化することのできる透明マントや、負の屈折率を利用して光の波長以下の分解能を持つ完全レンズといった、自然界の物質ではありえないような光学現象も実現可能であることが分かっている。現時点では、マイクロから波近赤外領域において負の屈折率を持つメタマテリアルの実現がなされており、可視光領域においては限られた条件でのみ実現可能となっている。そのため、可視光領域において様々な現象の実現に向けたメタマテリアルの研究が行われている。その 1 つとして、反射率がある角度でゼロとなるブリュースター現象が挙げられる。 光が屈折率の異なる物質の境界面に達すると、光の一部は境界面で反射される。しかしながら、ある条件がそろった場合に限り反射率がゼロとなるブリュースター現象が起きる。この現象は、自然界に存在する物質においては、光の偏光方向が入射面に平行な p 偏光を入射したときの特定の角度（ブリュースター角) でのみ起こるとされている。しかし、透磁率や誘電率を制御したメタマテリアルにより、s 偏光でもそのような無反射を実現することが可能であ

ることが知られている。

そこで、本研究では、独自の構造を持たせた光の波長より十分小さい周期性をもつ金属誘電体周期多層膜で構成されたメタマテリアルに、光の偏光方向が入射面に垂直なs偏光を入射した際、反射率がゼロとなるブリュースター現象の実現をするとともに、そのような現象をもたらすメタマテリアルの光学定数の解析を行うことを目的とする。

2. 方法

本研究では、シミュレーション言語Pythonを用いて、すべての計算プログラムを独自に作成し、多層膜構造の光学応答を解析した。また、その計算方法には、光が屈折率の異なる面に入射した場合、それらの関係を式で表す透過行列を用いた。具体的には、透過行列を用いて多層膜の反射係数と透過係数を求めた。その後、その結果を用いて多層膜を1つの材料としてみなした時の屈折率、インピーダンス、誘電率そして透磁率を求めた。

3. 結果

作成した計算プログラムにより、設計した多層膜構造に光を入射したときの反射率や透過率を計算し、その多層膜の光学特性を解析した。

設計したメタマテリアルは、1ユニットセルが高屈折率誘電体のTiO_2、金属のAg、低屈折率誘電体のSiO_2の3層から構成されている。計算の結果、2つの誘電体の膜厚が共に50nm、Agの膜厚が10nmの1周期110nmからなる構造のときに、3、4、7周期で多層膜が構成されている3つのパターンにおいてs偏光の光を入射するとブリュースター現象が起きることが確認された。

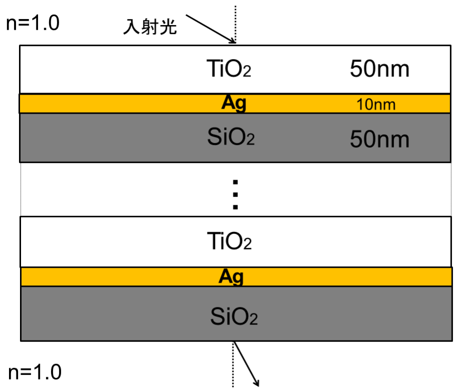


図 1: 設計した多層膜構造

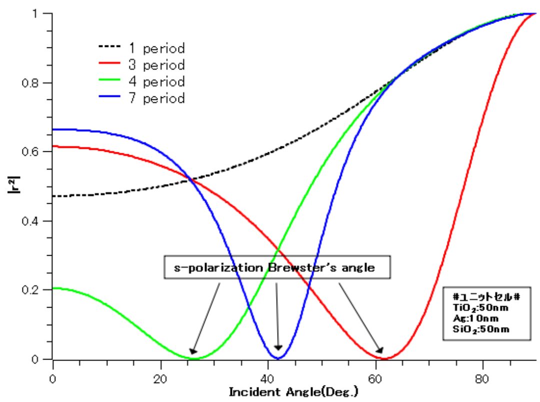


図 2: s偏光における反射率の入射角依存

4. まとめ

多層膜構造の反射率や透過率を計算し、その材料の光学定数を計算するプログラムを作成した。結果として、設計した金属誘電体多層膜メタマテリアルにs偏光の光を入射したときに反射率がゼロとなるブリュースター現象の実現に成功した。今後は、実際の応用を考え、設計したメタマテリアルを様々な基板に蒸着した際に反射率がゼロとなると

いう結果が得られるかをシミュレーションにより検証する。

卒業論文

周期多層膜メタマテリアルの設計及び その光学特性のシミュレーション解析

横浜市立大学
国際総合科学部
国際総合科学科
基盤科学コース

学籍番号 １１００３７

石田 紗知子

指導教官

横浜市立大学 ルジェロ・ミケレット 教授

目次

第 1 章

序論

1.1 研究背景

近年、従来は材料の物性によって実現していた電磁気的な特性を、材料の物性には頼らず、さまざまな屈折率を持つ材料を組み合わせることで、メタマテリアルと呼ばれる人工光機能物質を作成しようとする研究が発展してきている。

物質の屈折率は、真空中の光の速度とその物質中を進む光の速度との比によって定義される。また、物質の屈折率は、物質の比誘電率 ϵ と比透磁率 μ を掛け合わせ $\sqrt{}$ をとったものに等しいが、可視光領域 (400∼780nm) においては、図 1 に示されるように、物質の透磁率は 1、誘電率は真空において 1、誘電体では正の値で 2.0∼6.8、金属では負の値で-25∼0 をとる。すなわち、可視域においては透磁率が 1、誘電率が-25∼6.8 の物質の中で私たちは暮らしていることになる。その結果、可視光領域において自然界の物質の屈折率は正の値をとる。

しかしながら、金属や誘電体などを材料とした波長に比べて十分小さい構造を作成することにより、誘電率・透磁率が同時に負の値をとり、電場 $\boldsymbol{E}$, 磁場 $\boldsymbol{H}$, 波数ベクトル $\boldsymbol{k}$ は左手系の関係をなす。このため可視光領域において自然界の物質ではないような現象を実現することが可能となる。このような物質のことをメタマテリアルという。このような方法で ϵ や μ の制御ができれば、負の屈折率を実現するだけでなく、光の回折限界を超えた結像を持つ完全レンズや透過率が 100%となるクローキングといった現象が理論的に可能であることが証明されている。また、メタマテリアルは左手系物質のことを指すだけでなく、その他様々な現象が考案されているので、自然界に存在する物質では不可能な機能を生じるように設計された人工的な機能材料をメタマテリアルと呼ぶことが多い。

左手系メタマテリアルは、ロシアの物理学者 V.G.Veselago が 1967 年に誘電率・透磁率がともに負となる物質における電磁波伝搬を理論的に明らかにしたことにより注目を集めるようになった [7]。その後、J.B.Pendry が非常に細い導線の配列がマイクロ波領域で負の誘電率を与えることを実験的に証明し、透磁率が負となる分割リング共振器（SRR）が実現可能であることを発表した。その後、2001 年には Pendry と D.R.Smith らが金属ワイアと SRR を 2 次元的に配列したプリズム構造により、屈折の実験を行い、負の屈折が生じる周波数で確かに屈折率が負となることを実験的に証明した。

現在では、マイクロ波から近赤外領域において負の屈折の実現に至っており、可視光領域においてはフィッシュネット構造 [9] [10] を多数積み重ねた構造により負屈折率媒質の作製が可能であることが分かっている。

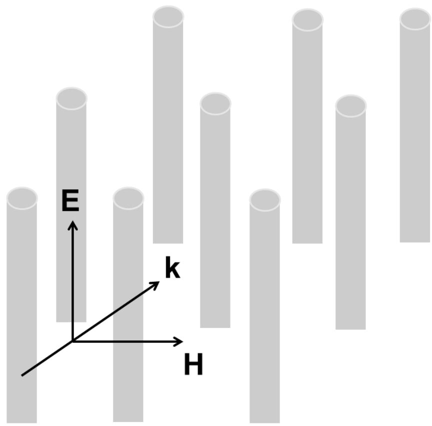


図 1.1: ペンドリーの人工構造. マイクロ波領域の応答を与える

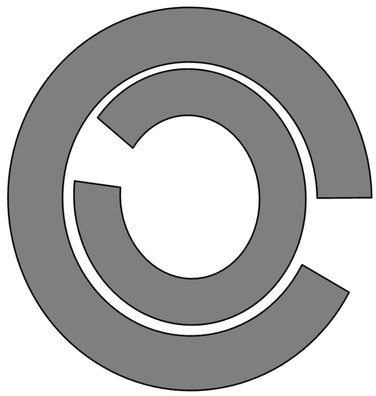


図 1.2: 分割リング構造

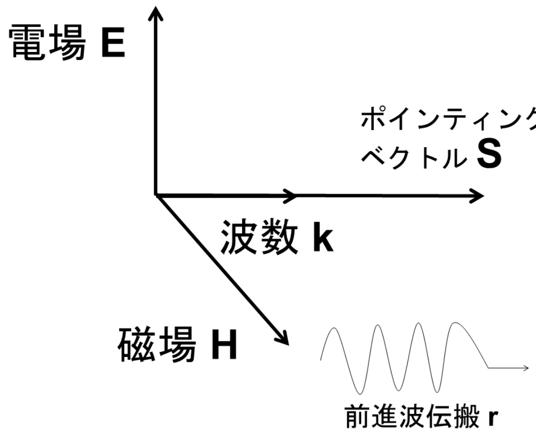


図 1.3: 右手系（通常の物質）

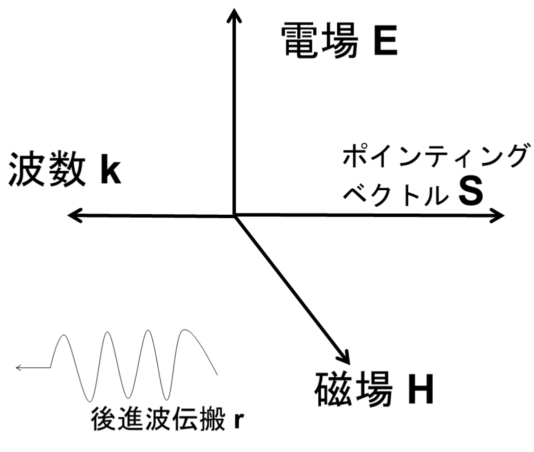


図 1.4: 左手系（メタマテリアル）

1.2 研究目的

マイクロ波・近赤外領域においては、さまざまな構造におけるメタマテリアルの実現に至っている。しかし、可視光領域におけるメタマテリアルは限られた条件でのみの実現に留まっており、現在もメタマテリアルによる様々な現象の実現に向けて研究がなされている。そこで、本研究では、独自の周期性をもつ多層膜構造の設計を、現在まで提案されてきた 2 種類の材料を用いたものとは違い、3 種類の材料を用いることで、単純な

1次元多層膜周期構造を設計することにより、可視光領域において光を入射したときに無反射となるブリュースター現象を、s偏光において実現し、またその設計したメタマテリアルの光学特性を解析することを目的とする。なお、一般的にブリュースター角というのは透明な2つの誘電体の界面で定義されるものであるので、本論文におけるメタマテリアル構造は金属を使用した多層膜構造であるため、その場合、反射率がゼロまたは最少になるような角度は、正確には、疑似ブリュースター角と呼ばれるが、本論文ではこれ以降、反射率がゼロまたは最少となる角度を新しくブリュースター角と定義する。

このような構造の設計及びその物質における光学特性の解析はすべて、自ら作製したシミュレーションプログラムで計算することにより、多くのパターンについての解析を可能にする。

第 2 章

双曲メタマテリアル

2.1　メタマテリアルとは

“メタ (meta)”とは、「高次の、超」といった意味であり、“メタマテリアル”は材料を超えた材料、すなわち人間の手で人工的につくられた物質を指し、メタマテリアルといっても様々な光学特性を持つものがあり、その言葉の持つ意味は非常に幅広く、自然界に存在する物質では不可能な機能を生じるように設計された人工的な機能材料をメタマテリアルと呼ぶことが多い。メタマテリアルは、金属や誘電体でできた棒状やコイル状の物質や薄膜などを組み合わせた人工的な構造体である。このような波長以下のサイズの構造体の集まりである人工光機能材料により、自然界に存在する物質では実現困難だった新しい機能を持った電磁波媒質を実現できるようになった。これは、電磁波の波長が構造のサイズや配置の間隔に比べて十分大きい場合、その集合体は電磁的な連続媒質とみなせるためである。これと似た現象を示すものとしてフォトニック結晶があるが、メタマテリアルが波長より小さな構造を持つのに対し、フォトニック結晶は、波長程度の長さの周期構造によりフォトニックバンドを形成し、特異な光学物性が発現する。負の屈折や光電場の増強効果など類似する光学機能を持つことも多いため、メタマテリアルとフォトニック結晶は類似のものと誤解されやすいが、本質的に異なる。機能の起源が結晶構造ではなく個々の構成単位に由来することは、材料の形として様々な可能性を与える。すなわち、メタマテリアルは結晶である必要はなくアモルファス状態や液体中や高分子などに分散した形でもよく、様々な材料としての可能性が広がっていると言える。

また、メタマテリアルの特徴として、サブ波長以下の構造を独自に設計することにより、限られた波長領域だけでなく、マイクロ波やテラヘルツ波といった低周波数域から可視域の光波、赤外線といった高周波数域に至るまでの幅広い範囲においてこのような機能を実現できることも挙げられる。

構造や種類の異なる材料を組み合わせることによりつくられた人工的な構造体の、様々な光学定数を変化させることができる点がメタマテリアルの最も大きな特徴であり、この変化により実現される様々な現象や特徴については以下で述べる。

2.2　誘電率、透磁率の制御（負の屈折率）

メタマテリアルの特徴の1つは、従来誘電率 ϵ の制御によって影響されてきた光学現象に透磁率 μ という新たな自由度が導入できることにある。

メタマテリアルで観測される現象で最も良く知られたものが、負屈折である。Maxwell の方程式は電磁波の伝搬の様子を厳密に表しており、電磁波の振る舞いは、それが伝搬する空間の誘電率 ϵ と透磁率 μ により決定される。式 (2-2-1)〜式 (2-2-4) がマクスウェルの方程式である。

$$\nabla \times \boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} = -\mu\mu_0 \frac{\partial \boldsymbol{H}}{\partial t} \tag{2-2-1}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H} = \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t} + \boldsymbol{j} = -\epsilon\epsilon_0 \frac{\partial \boldsymbol{E}}{\partial t} + \boldsymbol{j} \tag{2-2-2}$$

$$\nabla \cdot \boldsymbol{D} = \rho \tag{2-2-3}$$

$$\nabla \cdot \boldsymbol{B} = 0 \tag{2-2-4}$$

ここで、$\boldsymbol{E}$ は電場、$\boldsymbol{D}$ は電束密度、$\boldsymbol{H}$ は磁場、$\boldsymbol{B}$ は磁束密度、$\boldsymbol{j}$ は電流密度、ρ は電荷である。

通常、可視光領域において物質の透磁率 μ は真空中の透磁率 μ_0 =1 に等しく、

$$\nabla \times \boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \boldsymbol{H}}{\partial t} \tag{2-2-5}$$

となる。屈折率は、比誘電率 ϵ_r と比透磁率 μ_r で与えられ、次式で表される。

$$n = \sqrt{\frac{\epsilon}{\epsilon_0}}\sqrt{\frac{\mu}{\mu_0}} = \sqrt{\epsilon_r}\sqrt{\mu_r} \tag{2-2-6}$$

しかしながら、可視域においては先ほども述べたように透磁率が μ_0 に近いため $\mu_r = 1.0$ となる。ϵ_r や μ_r が 1.0 以外の値をとるのは物質がそれぞれの電場、磁場に反応するときである。ϵ_r の変化は電子の振動が、μ_r の変化は電子の角運動量が担っている。これらの変化が現れる周波数帯域は異なっており、ϵ_r においては数 T〜100THz という高い周波数帯域で応答するのに対し、μ_r においては 100GHz 程度までの周波数にしか反応せず、両者の重なる帯域がないため物質の ϵ_r と μ_r が同時に変化することはない。これが、自然界において図 2.1 で示した第 3 象限に属する物質が存在しない理由であり、自然界におけるほとんどの物質が数 100THz という可視光領域において磁性を失う、つまりは $\mu_r = 1.0$ となる理由である。そのため、屈折率 $n = \sqrt{\epsilon_r}$ となり物質の誘電率だけで物質の屈折率が決定され、屈折率は正の値をとる。また、ϵ_r か μ_r のどちらか一方が負になると屈折率は純虚数になる（第 2、4 象限）。すると波数も虚数になり、波動の振幅は指数関数的に減少（あるいは増大）することになり、波は伝搬しない。金属が可視光より低い周波数に対して不透明なのは、プラズマ周波数以下で誘電率が負になるためである。

ところが、メタマテリアルの場合、μ_r を 1.0 から変化させたり、ϵ_r を制御したりすることで屈折率を自在に変化させることが可能となる。メタマテリアルには、物質の誘電率を制御するもの、透磁率を制御するもの、またその両方を制御するものがあるが、こ

こでは、ϵ と μ の両方を制御することにより屈折率を制御した負の屈折について記す。

同時に、$\epsilon_r < 0$ と $\mu_r < 0$ になると式 (2-2-6) から分かるように屈折率 n も負となる。これが、負の屈折率であり、図 1.4 に示すように、通常媒質とは逆に、($\boldsymbol{E}$、$\boldsymbol{H}$、$\boldsymbol{k}$) が左手系をなすのでこのような性質をもつものは左手系媒質と呼ばれる。図 2.2 に示すような光の屈折を考える。媒質 1(屈折率 $n_1 > 0$)から媒質 2(屈折率 $n_2 < 0$)に光が入射するときの入射角を θ_1、屈折角を θ_2 とすると、

$$n_1 \sin\theta_1 = n_2 \sin\theta_2 \tag{2-2-7}$$

と表される(スネルの法則)。よって、$n_2 < 0$ のとき $\sin\theta_2 < 0$ となり屈折角 $\theta_2 < 0$ となる。つまり、屈折角は負の値をとり図 2.2 に示すような光の屈折を示す。

この負の屈折率の実現により最も期待されているのは完全レンズであり、それについては 2.3 で記す。

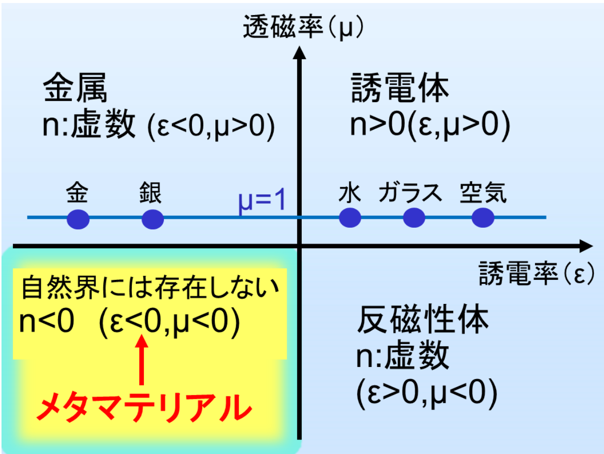


図 2.1: ϵ-μ 関係図. 可視光領域においては、自然界の物質は図の第 1,2,4 象限に属するため屈折率が負の値をとることがない。しかしながら、左手系メタマテリアルの場合、ϵ,μ が同時に負になるため屈折率も負となり図の第 3 象限に属することになる。自然界では、このような負の屈折率を示す物質はない。

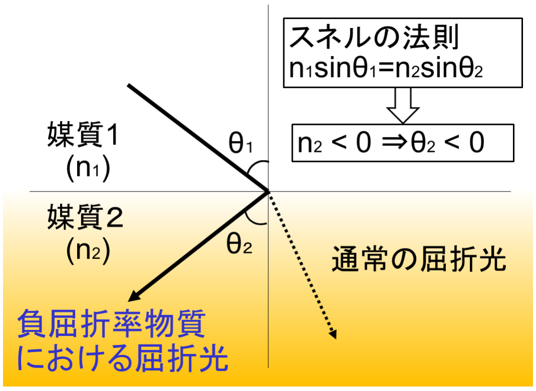


図 2.2: 光の負屈折. 上下に接する 2 層の材料（媒質 1,2）が右手系材料の場合に、光が入射すると通常の屈折現象では図に示すように媒質 1 側の物質中の入射光と媒質 2 側の物質中の透過光の方向は、法線に対して互いに反対側になる。それに対し、媒質 1 側の層が右手系材料、媒質 2 側の層が左手系材料の場合には、図に示すように、媒質 2 側の左手系材料中を透過する方向は、法線に対し入射光と同じ側となる。このような現象から、左手系材料では屈折角が負となっていると解釈される。また、そのことはスネルの法則からも分かるように、屈折率が正の媒質から負の媒質に光が入射した場合、$\sin\theta_2 < 0 \Rightarrow \theta_2 < 0$ となる。

2.3 完全レンズ

$n = -1$ の物質に真空から光が入射すると、先ほども述べたようにスネルの法則から光は通常とは逆の方向の”く”の字に屈折する。これを利用すると、図のような光の屈折が可能となり、指数関数的に減衰するエバネッセント場を増幅して伝搬させる機能を持つのでレンズの対象物付近の近接場を含めて像側に結像できる。つまり、通常のレンズのような光の波長における分解能の回折限界が存在せず、波長以下の分解能の実現が可能である。ペンドリーは、負の屈折率をもつ平面板による結像では回折による波長分解能の限界を超えるという議論を行った [2]。

分散関係式は自由空間で、

$$k_{x^2} + k_{y^2} + k_{z^2} = \epsilon_0\mu_0\frac{\omega^2}{c^2} = k_{0^2} \tag{2-3-1}$$

ここで、(k_x, k_y, k_z) は波数の (x,y,z) 成分、ω は角振動数、c は光速、k_0 は真空中における波数である。

式 (2-3-1) の分散関係は、それと直行する成分の波数が虚数になることを意味しており、このような光はエバネッセント波と呼ばれ、指数関数的に減少するので遠方では観測されない。しかし、負の屈折率をもつ板状媒質により伝搬波もエバネッセント波も像面で同じ振幅を持つので、像は完全に復元できることになると Pendry は指摘した。

負の屈折率の実現には先にも述べたように誘電率と透磁率の両方が負であることが必要であるが、光学領域でそれを実現するには、メタマテリアルの単位胞（メタ原子）が

光波長よりも十分に小さい場合には電場と磁場は独立に扱うことができる。完全レンズは、現在マイクロ波領域で動作が確認されている。

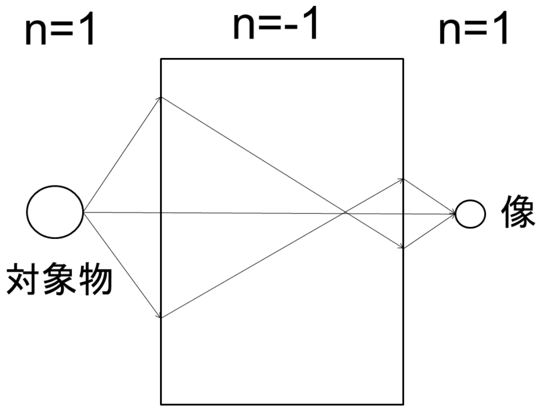


図 2.3: 完全レンズ． 屈折率が-1 のレンズを空気中に置いた場合の像の光の屈折の仕方。図のように光が屈折するため、スラブ内と外とで 2 度焦点を結ぶことにより、波長に比べて十分小さい点の像をそのままの大きさで結像させることができるため、回折限界を超えた結像が可能となる。

2.4 クローキング（透明マント）

メタマテリアルの応用例として、クローキング [5] がある。クローキングとは、ある物体に対してメタマテリアルでできたクローキング物質を被せることで、マントに当たった電磁波が反射せずに物体を迂回して、まるでそこに物質が存在しないかのように見せかける技術である。現在、マイクロ波の領域では実現されているが [5]、可視光領域においては限られた条件でしか実現されていない [11]。

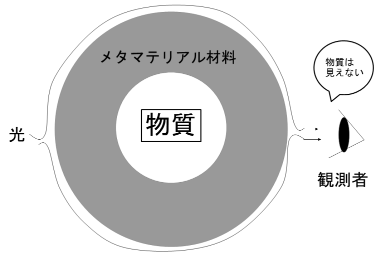


図 2.4: クローキング 隠したい物体をメタマテリアル材料で覆うことで、観測者には物体が見えない。

2.5　s 偏光におけるブリュースター現象

光が屈折率の異なる物質の境界面に達すると、光の一部がその境界面で反射されることがある。この光の反射は、入射面と透過面の屈折率の違いがある場合に起こりうる。しかしながら、光の偏光方向が入射面に平行な p 偏光においては反射率がゼロとなる現象があり、これはブリュースター現象と呼ばれており、反射率がゼロとなる入射角をブリュースター角という。先にも述べたように、屈折率の違いは可視光領域において ϵ の違いなので、媒質の境界面では ϵ が変化している。しかし、可視光領域においては $\mu = 1.0$ なので、μ の値は変化せずに連続である。これが、ブリュースター現象の偏光依存性を生む。しかし、もし物質の透磁率を変化させることできれば、Maxwell の方程式の対称性から光の偏光方向が入射面に垂直な s 偏光においても同様の現象が可能であることが理論的に説明できる。実証としては、マイクロ波領域において分割リング共振器（split-ring-resonator,SRR）により [3]（図 2.5）、可視光領域においては Ag、Al_2O_3 をサファイア基板上に積層する金属誘電体多層膜構造を用いた構造により、s 偏光に対する反射波の減少を示した実証がある [1]。

このs偏光におけるブリュースター現象の発現が、無反射素子を実現するための基本的なアイデアとなり、これを用いることで、これまでにない光学現象が実現でき、様々なデバイスへの応用が期待できる。

本研究では、このs偏光におけるブリュースター現象に着目し研究を行った。なお、

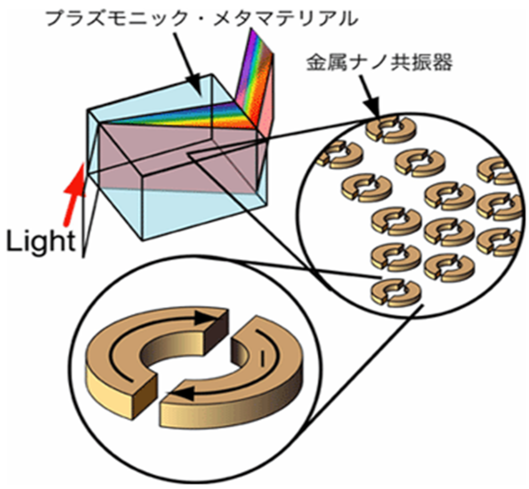


図 2.5: プラズモニックメタマテリアル．[3] より引用

第 3 章

任意の屈折率を持つ材料による多層膜の設計

今回計算に用いた多層膜構造は図 3.1 に示したものである。ユニットセルは、誘電体-金属-誘電体の $TiO_2/Ag/SiO_2$ の三層で構成されており、それぞれの誘電体の膜厚を共に 50nm、金属の膜厚を 10nm とした。この多層膜を屈折率 $n = 1.0$ の空気中に配置したときに可視光を入射したときの光学応答の解析を行った。

TiO_2 は高い屈折率をもつ誘電体として知られており、SiO_2 は低い屈折率を持つ誘電体として知られている。この 2 つの材料を積層した多層膜に光を入射すると、高反射率の誘電体多層膜反射鏡を作ることが可能となることが知られている。しかし、本研究では s 偏光において反射率がゼロとなるブリュースター現象を実現することを目的としているので、この誘電体膜にもう 1 つの材料を積層し多層膜を構成することで逆に、反射率が低くなる現象を実現できないかと考えた。Ag を選んだ理由としては、他の金属に比べて吸収が少ないためである。

表 3.1: 設計した多層膜の膜厚と光学定数. 計算に使用した多層膜構造は、ユニットセルの構造が、誘電体金属誘電体の 3 層から構成されており、各膜厚は $TiO_2$50nm,Ag10nm,$SiO_2$50nm となっている。1 周期あたりの膜厚は、110nm である。各層の屈折率は、入射波長 550nm のときのものを計算に使用し、計算方法については文献 [12] [13] を参照した。

材料	膜厚 nm	屈折率 n	誘電率 ϵ	透磁率 μ
TiO_2	50	2.65	7.01	1.0
Ag	10	0.02+3.97i	-15.8+0.18i	1.0
SiO_2	50	1.46	2.13	1.0

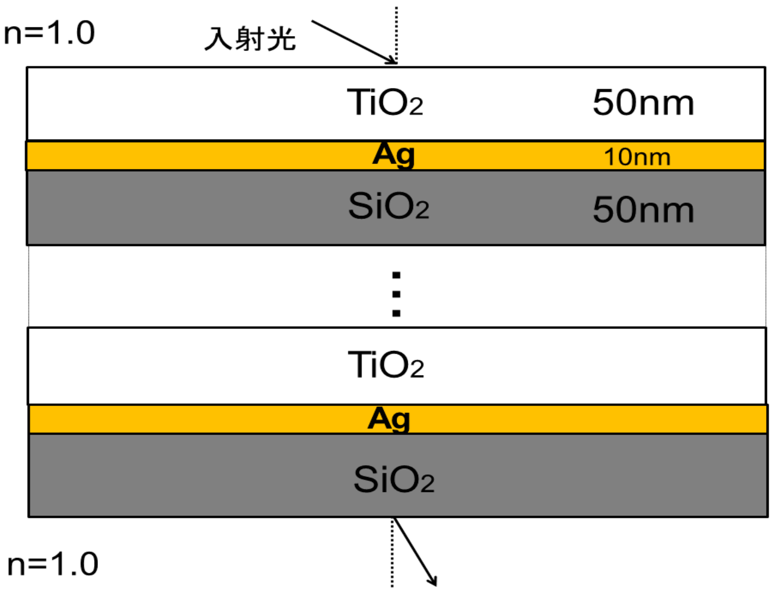


図 3.1: 設計した多層膜構造 図 3.1:1 周期が誘電体金属誘電体の 3 層から構成されている。

第 4 章

設計した多層膜メタマテリアルの反射率と透過率

4.1 実験方法（シミュレーション計算）-透過行列法による反射・透過係数の計算

多層膜構造の光学特性を計算する方法には、さまざまな方法が知られている。本研究では、多層膜構造における反射係数や透過係数を求めるために、マクスウェル方程式の境界条件を考えることで電磁場の分布を厳密に計算する透過行列法（T-matrix 法） [8] を用いた。以下に、その計算方法を示す。作成したプログラムは、付録に添付した。

計算にあたっては、光の入射面が xz 平面になるように、座標系を図 4.1 のようにとる。$z > 0$ の領域に $L-1$ 層の金属誘電体層があり、l 番目の層の比誘電率および比透磁率をそれぞれ ϵ_l および μ_l、厚さを h とする。さらに、入射波は z 軸から角度 θ_0 で入射するとすれば、各層での屈折角 θ_i は、スネルの法則 $n_i \sin\theta_i = n_0 \sin\theta_0$ により計算できる。$l = L$ を入射領域、$l = 0$ を透過領域とする。

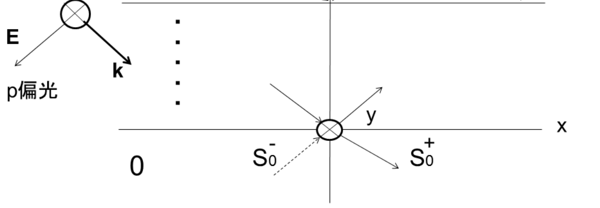


図 4.1: 多層構造における反射と透過

i) p 偏光の場合
磁場ベクトルが y 軸を向いている場合について考える。
l 番目の層での磁場は次式で書ける。簡単のため、時間依存項の $e^{-i\omega t}$ は省略する。

$$H_l(z) = H_0^+ \exp(ik_{zl} \cdot z) + H_0^- \exp(-ik_{zl} \cdot z) \tag{4-1-1}$$

$$k_{zl} = n_i k_0 \cos\theta_i \tag{4-1-2}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H} = \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t} = -i\epsilon\epsilon_0\omega\boldsymbol{E} \tag{4-1-3}$$

以上より、p 偏光においては、$H_x = H_y = 0$ となるので、

$$E_x = \frac{Z_0}{\epsilon}\frac{k_z}{k_0}H_y \tag{4-1-4}$$

ただし、$Z_0 = \frac{\mu_0}{\epsilon_0}$ は真空のインピーダンスとした。
以上より、

$$E_l(z) = \frac{k_{zl}}{k_0}\frac{Z_0}{\epsilon_l}H_l^+ \exp(ik_{zl} \cdot z) - \frac{k_{zl}}{k_0}\frac{Z_0}{\epsilon_l}H_l^- \exp(-ik_{zl} \cdot z) \tag{4-1-5}$$

となる。z 座標は各層において下側の界面を基準にとっている。
第 l 層と第 $l+1$ 層との界面では次の境界条件が成立するので、

$$H_{l+1}(0) = H_l(h_l) \tag{4-1-6}$$

$$E_{l+1}(0) = E_l(h_l) \tag{4-1-7}$$

式に書き下すと、

$$H_{l+1}^+ + H_{l+1}^- = H_l^+ \exp(ik_{zl} \cdot h_l) + H_l^- \exp(-ik_{zl} \cdot h_l) \tag{4-1-8}$$

$$\frac{k_{zl+1}}{\epsilon_{l+1}}H_{l+1}^+ - \frac{k_{zl+1}}{\epsilon_{l+1}}H_{l+1}^- = \frac{k_{zl}}{\epsilon_l}H_l^+ \exp(ik_{zl} \cdot h_l) - \frac{k_{zl}}{\epsilon_l}H_l^- \exp(-ik_{zl} \cdot h_l) \tag{4-1-9}$$

となる。これを行列形式に書き表すと、

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \frac{k_{zl+1}}{\epsilon_{l+1}} & -\frac{k_{zl+1}}{\epsilon_{l+1}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} H_{l+1}^+ \\ H_{l+1}^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \frac{k_{zl}}{\epsilon_l} & -\frac{k_{zl}}{\epsilon_l} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(ik_{zl} \cdot h_l) & 0 \\ 0 & \exp(-ik_{zl} \cdot h_l) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} H_l^+ \\ H_l^- \end{bmatrix} \tag{4-1-10}$$

$\alpha_l = \frac{k_{zl}}{\epsilon_l}$ とすると、

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \alpha_{l+1} & -\alpha_{l+1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} H_{l+1}^+ \\ H_{l+1}^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \alpha_l & \alpha_l \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(ik_{zl} \cdot h_l) & 0 \\ 0 & \exp(-ik_{zl} \cdot h_l) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} H_{l+1}^+ \\ H_{l+1}^- \end{bmatrix} \tag{4-1-11}$$

$$\begin{bmatrix} H_l^+ \\ H_l^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \alpha_{l+1} & -\alpha_{l+1} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \alpha_l & -\alpha_l \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(ik_{zl} \cdot h_l) & 0 \\ 0 & \exp(-ik_{zl} \cdot h_l) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} H_l^+ \\ H_l^- \end{bmatrix} \tag{4-1-12}$$

$$M_l = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \alpha_{l+1} & -\alpha_{l+1} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ \alpha_l & -\alpha_l \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(ik_{zl} \cdot h_l) & 0 \\ 0 & \exp(-ik_{zl} \cdot h_l) \end{bmatrix}$$ とおくと、

$$\begin{bmatrix} H_{l+1}^+ \\ H_{l-1}^- \end{bmatrix} = M_l \begin{bmatrix} H_l^+ \\ H_l^- \end{bmatrix} \tag{4-1-13}$$

となる。M_l は、第 l 層の透過行列（$T - matrix$）と呼ばれる。これを用いると、最初と最後における電磁場の関係式は次式で表される。

$$\begin{bmatrix} H_l^+ \\ H_l^- \end{bmatrix} = M_{L-1} M_{L-2} \cdots M_0 \begin{bmatrix} H_0^+ \\ H_0^- \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} H_0^+ \\ H_0^- \end{bmatrix} \tag{4-1-14}$$

ここで、$M = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{bmatrix}$ は系全体の透過行列である。M を用いると、反射係数 r、透過係数 t は、

$$r = \frac{H_L^+}{H_L^-} = \frac{m_{12}}{m_{22}} \tag{4-1-15}$$

$$t = \frac{H_0^-}{H_L^-} = \frac{1}{m_{22}} \tag{4-1-16}$$

となる。以上が、反射係数、透過係数を求める計算式である。

ii) s 偏光の場合

電場ベクトルが y 軸を向いている場合について考える。

p 偏光同様に計算すると、

$$\begin{bmatrix} E_{l+!}^+ \\ E_{l+1}^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ -\beta_{l+1} & \beta_{l+1} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ -\beta_l & \beta_l \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(ik_{zl} \cdot h_l) & 0 \\ 0 & \exp(-ik_{zl} \cdot h_l) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_l^+ \\ E_l^- \end{bmatrix} \tag{4-1-17}$$

$$M_l = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ -\beta_{l+1} & \beta_{l+1} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ -\beta_l & \beta_l \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(ik_{zl} \cdot h_l) & 0 \\ 0 & \exp(-ik_{zl} \cdot h_l) \end{bmatrix}$$ とおくと、

$$\begin{bmatrix} E_{l+1}^+ \\ E_{l-1}^- \end{bmatrix} = M_l \begin{bmatrix} E_l^+ \\ E_l^- \end{bmatrix} \tag{4-1-18}$$

となる。ただし、$\beta_l = \frac{k_{zl}}{\mu_l}$ とする。

$M = \begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{bmatrix}$ を系全体の透過行列とすると、反射係数 r、透過係数 t は、

$$r = \frac{E_L^+}{E_L^-} = \frac{m_{12}}{m_{22}} \tag{4-1-19}$$

$$t = \frac{E_0^-}{E_L^-} = \frac{1}{m_{22}} \tag{4-1-20}$$

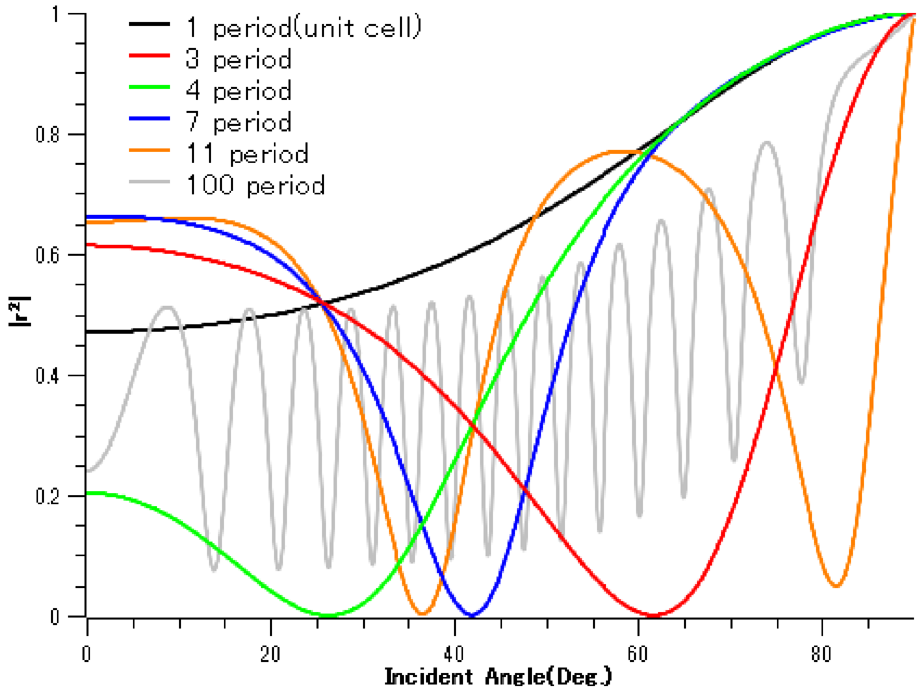
となる。

4.2 シミュレーション結果

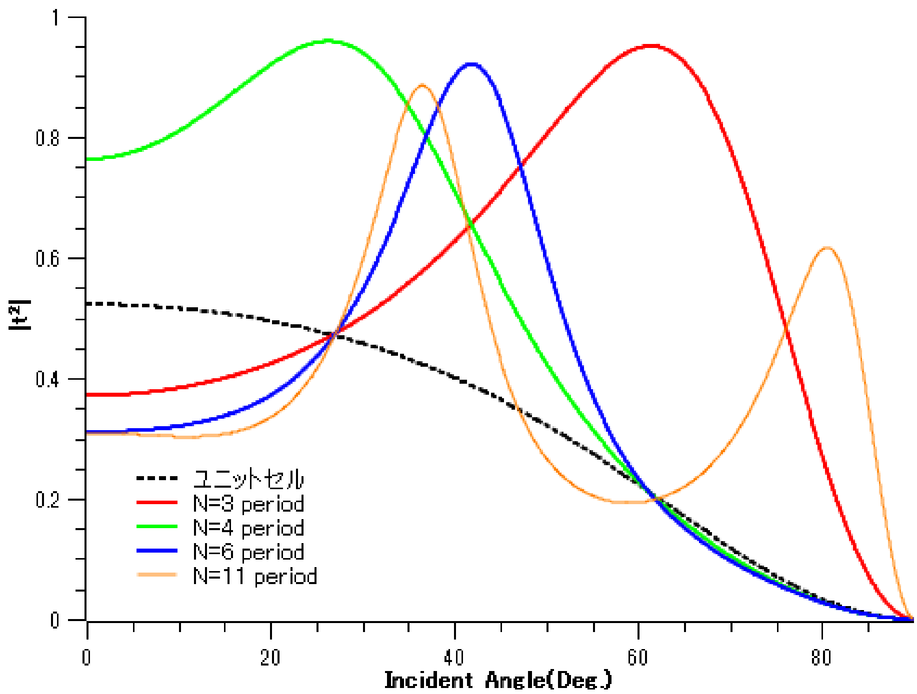
4.2.1 入射角依存性

様々な周期における反射率を計算した結果、多層膜が 3、4、7 周期から構成さている時に反射率がほぼゼロとなるブリュースター現象が観測された。なお、本来ブリュースター角というのは透明な 2 つの誘電体の界面で定義されるものであり、一般的に、金属を含む構造に p 偏光を入射した際に反射率がほぼゼロとなる角度は疑似ブリュースター角と呼ばれる。本論文では、メタマテリアル構造が金属を使った周期構造からなり、反射率と透過率のグラフからも分かるように金属によりある程度の吸収があることが分かる。そこで、本論文では、金属誘電体多層膜構造からなる物質に光を入射したときに反射率がゼロまたはほぼゼロとなるときの角度を新たに、ブリュースター角と定義する。

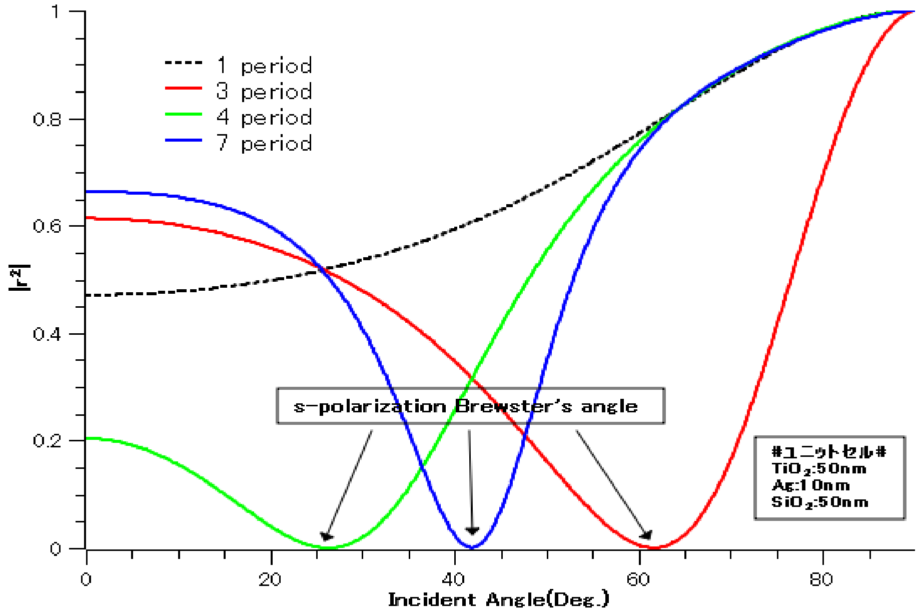
550nm の s 偏光の光を設計した多層膜に入射したところ、4.2(c) のグラフから分かるように、3 周期のときは入射角が 62°、4 周期のときは入射角が 26°、7 周期のときは入射角が 42°において反射率がほぼ 0 となった。また、4.2(b) のグラフからも分かるように、3 周期、4 周期、7 周期から多層膜構造がなるときに透過率はほぼ 1 に近い値をとっており、金属における吸収はほとんどないことが分かる。よって、これらの角度が本論文で定義したブリュースター角だと言え、この構造パターンにより、s 偏光における反射率がほぼゼロとなるブリュースター現象を実現できたと考える。
次ページに、その 3 パターンにおける反射率と透過率の計算結果を示す。



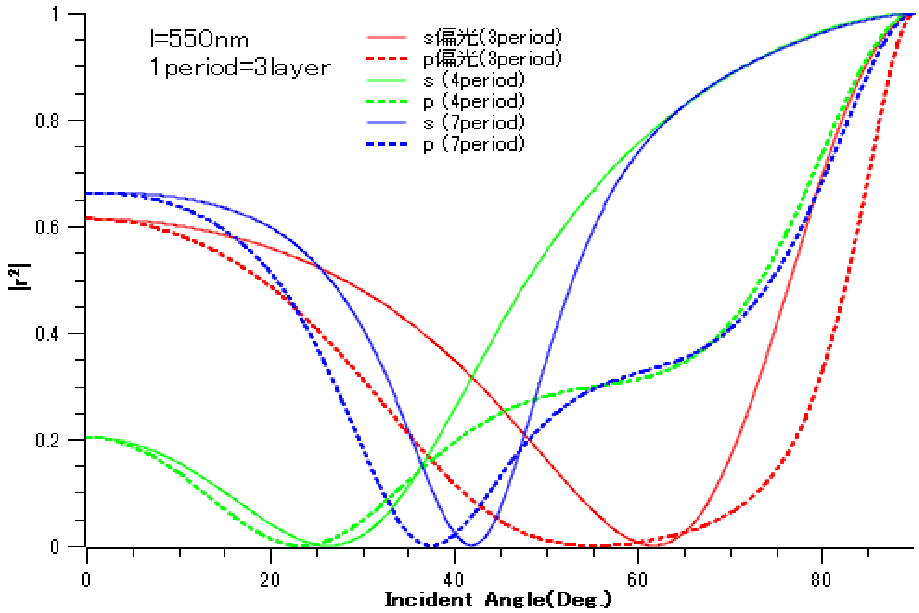
(a) s 偏光における反射率



(b) s 偏光における透過率



(c) s 偏光における反射率の入射角依存

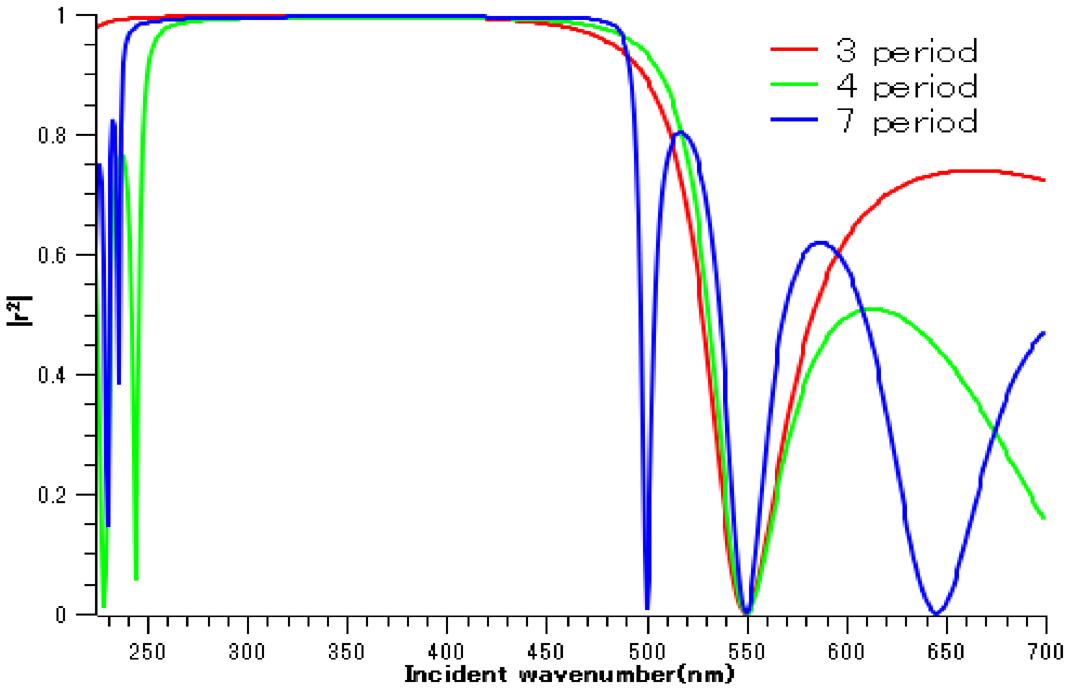


(d) s 偏光と p 偏光における反射率の入射角依存

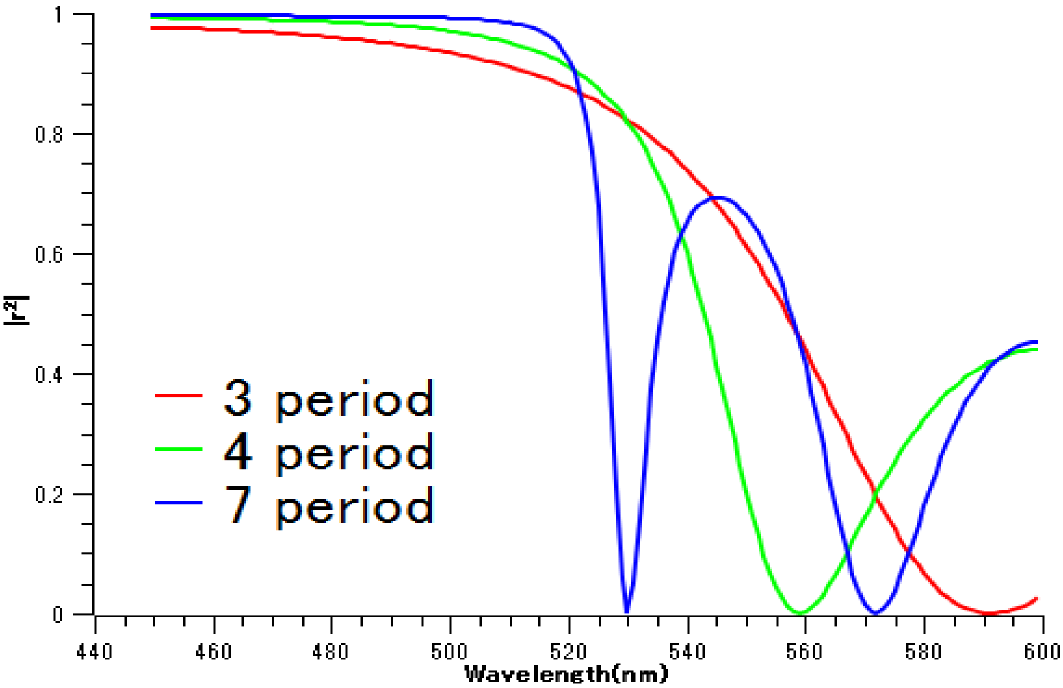
図 4.2: 反射率と透過率の入射角依存: 1 周期は 3 層からなる多層膜。入射光の波長は 550nm に固定した。4.2(a)s 偏光の光を入射したときの反射率の入射角依存。4.2(b)s 偏光の光を入射したときの透過率の入射角依存。3、4 および 7 周期からなる多層膜構造のときに透過率はほぼ 1 となっており、金属による吸収があることが分かる。4.2(c)3、4 および 7 周期から多層膜が構成されているときに反射率がゼロとなるブリュースター現象が見られる。4.2(d)s 偏光と p 偏光ではブリュースター現象の現れる光の入射角が異なる。

4.2.2　入射波長依存性

ブリュースター角を、光の入射角として反射率の入射波長依存性を計算した結果、入射波長 550nm のときにおいて反射率はゼロとなっていることが分かる。よって、この角度において反射率がゼロとなるブリュースター現象が実現されていることが 4.3(a) のグラフからも分かる。また、入射角を 0° の垂直入射として計算した結果、550nm では反射率がゼロとなるブリュースター現象がなかったが、垂直入射の場合には他の入射波長においてブリュースター角が現れることが分かった。



(a) 入射角は反射率がゼロとなるブリュースター角

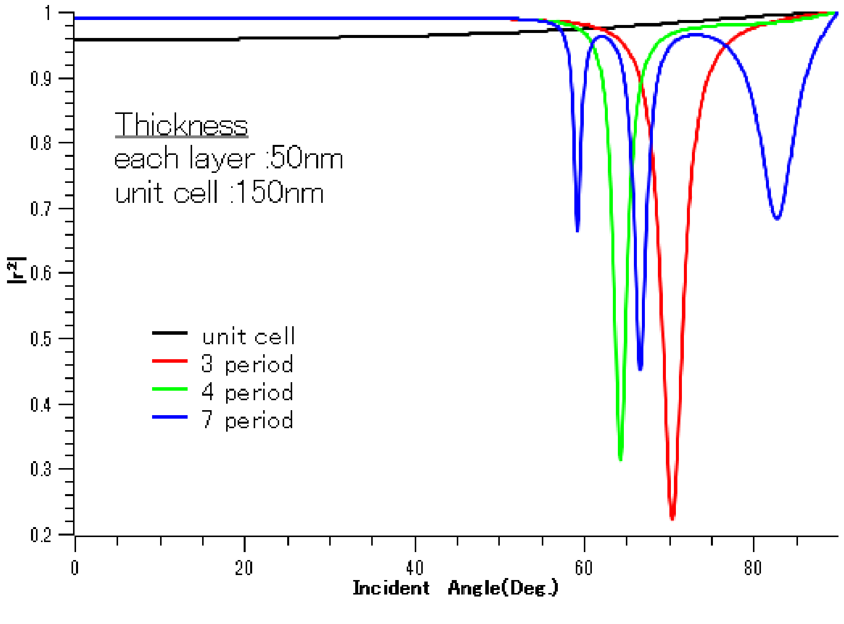


(b) 入射角は 0°

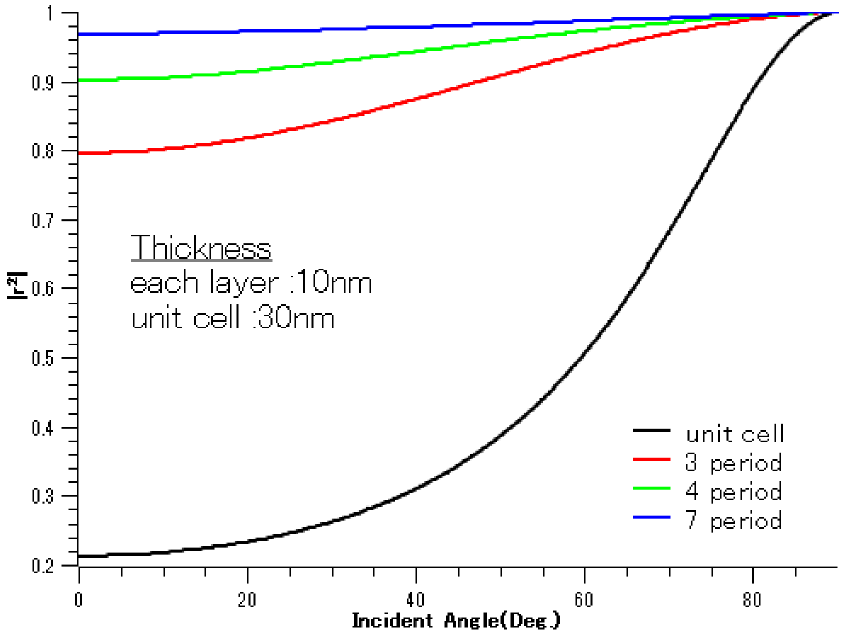
図 4.3: s 偏光における反射率の入射波長依存. 4.3(a):光の入射角を、図 4.2(a) の結果から、それぞれの多層膜周期におけるときに反射率がゼロとなっているブリュースター角の角度として、s 偏光の光を入射したときの反射率の入射波長依存を計算した。4.3(b):光の入射角を 0° として計算した。

4.2.3　多層膜の膜厚依存性

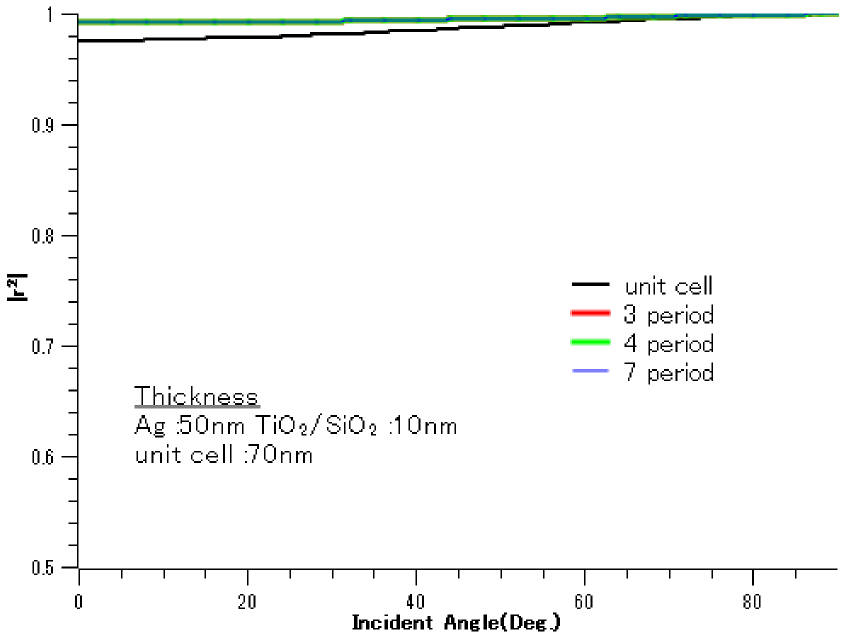
今回の3つの材料（TiO_2、Ag、SiO_2）を用いた場合には、各層の厚さが誘電体が50nm、金属が10nmの場合にs偏光におけるブリュースター現象が観測されたが、この最適な膜厚を決めるにあたって、他の膜厚の組み合わせにおける反射率を計算した結果を図4.4に示す。図4.4(a) および4.4(b) より、各層の厚さが同じ場合には、ブリュースター現象は観測されず、また、波長に対して膜厚が小さく1ユニットセルの厚さが小さい場合には、多層膜の周期が増えるほどほとんどの光が反射されることが分かった。そして、図4.4(c) から分かるように金属の厚さが誘電体の厚さよりも大きい場合には、光はほとんど反射され透過しないことが分かる。以上より、この3つの材料を用いた構造においてs偏光におけるブリュースター現象を生じる膜厚は誘電体の厚さが50nm、Agの厚さが10nmの1ユニットセルが110nmからなる構造だと分かった。



(a) 反射率膜厚50nm



(b) 反射率膜厚 10nm



(c) 反射率誘電体 10nm, 金属 50nm

図 4.4: 反射率の膜厚依存. 入射波長は 550nm。 4.4(a):各膜厚が 50nm。1 周期 150nm。4.4(b):各膜厚が 10nm。1 周期 30nm。4.4(c):誘電体の膜厚 10nm、金属の膜厚 50nm。

第 5 章

反射係数、透過係数から物質の有効誘電率、有効透磁率の決定

5.1 計算方法

有効誘電率、有効透磁率を求める計算には、文献 [14] を参考にした。求めるメタマテリアルの有効屈折率を n、入射光の真空における波数を k、メタマテリアルの膜厚を d とすると、

$$\cos{(nkd)} = \frac{1}{2t}[1-(r^2-t^2)] \tag{5-1-1}$$

となる。よって、有効屈折率 n は次式で表される。

$$n = \frac{1}{kd}\cos^{-1}{(\frac{1}{2t}[1-(r^2-t^2)])} + \frac{2\pi}{kd}m \tag{5-1-2}$$

一方、メタマテリアルのインピーダンス Z は次式で表される。

$$Z = \pm\sqrt{\frac{((1+r)^2-t^2)}{((1-r)^2-t^2)}} \tag{5-1-3}$$

ただし、複合は Re(Z)>0 および Im(n)>0 となるように選択する。この 2 式により、設計した多層膜構造メタマテリアルの屈折率 n とインピーダンス Z を求めた。さらに、これらの値より、メタマテリアルの有効誘電率 ϵ_{eff} と有効透磁率 μ_{eff} は次式で表される。

$$\epsilon_{eff} = \frac{n}{Z} \tag{5-1-4}$$

$$\mu_{eff} = nZ \tag{5-1-5}$$

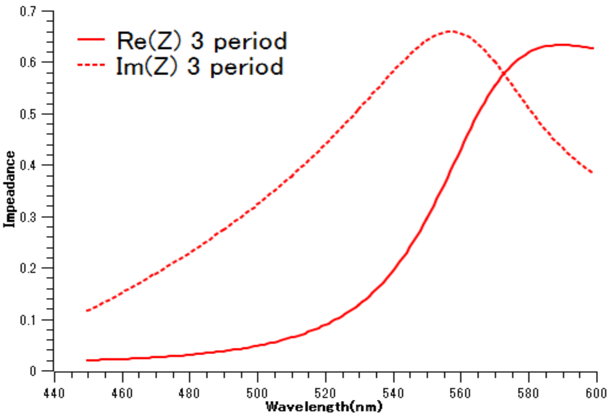
この 2 式により、設計した多層膜構造メタマテリアルの有効誘電率と有効透磁率を求めた。なお、これらの計算方法は光が垂直入射をするときのみ適用される。

5.2 シミュレーション結果

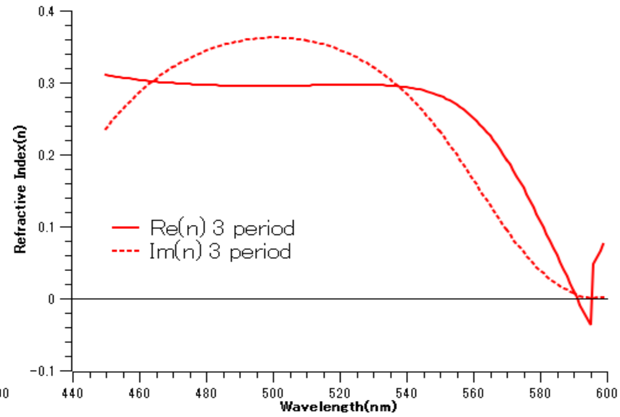
垂直入射のときにおける光学定数を解析した結果を図 5 に示す。グラフから分かるように、透磁率は真空中の 1.0 から大きく変化しており、波長によって様々な値をとること

が分かる。また、3、4 および 7 周期からなる多層膜メタマテリアルのすべての場合において、誘電率と透磁率が共に負になり、屈折率が負となる波長領域があることが分かる。図 4.3(b) より、光の反射率が 1 付近から大きく変化している波長領域において、インピーダンス、屈折率、誘電率そして透磁率も大きく変化していることが分かる。これらの結果から、多層膜メタマテリアルの周期やその膜厚の違いだけでなく、波長によっても反射率やその物質の光学定数は大きく変化することが分かる。以上の結果から、独自に設計した構造に光を垂直に入射することで反射率がゼロとなるときの波長は、多層膜メタマテリアル構造の周期の違いに依存し、また、垂直入射の場合には、4.3(b) のグラフからも分かるように 550nm の入射波長以外の波長でも反射率がゼロとなるブリュースター現象が起きると考えられ、入射角度によっても反射率は大きく変わると考えられる。そして、通常光学領域では $\mu = 1$ とされている透磁率を 1 の値から変化させ、屈折率などの光学定数を変化させることに成功し、反射率がゼロとなる現象を生じさせることができるのだと分かった。以下に、それぞれの周期における光学定数の計算結果のグラフを示す。

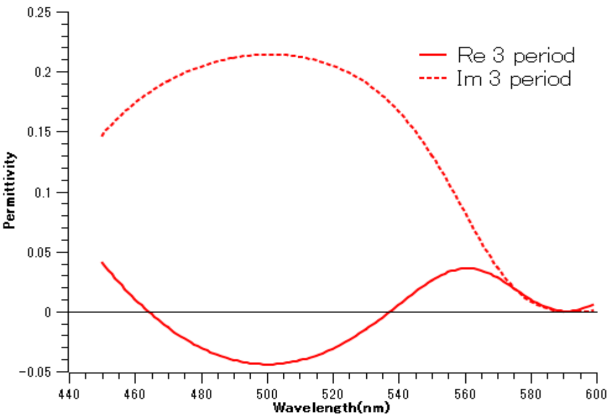
3 周期（全膜厚 330nm）



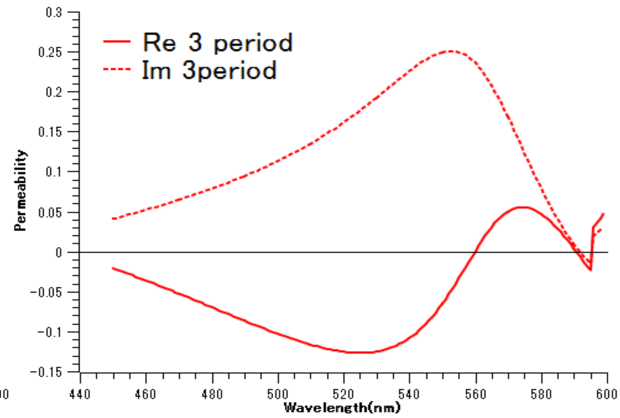
(a) インピーダンス



(b) 屈折率



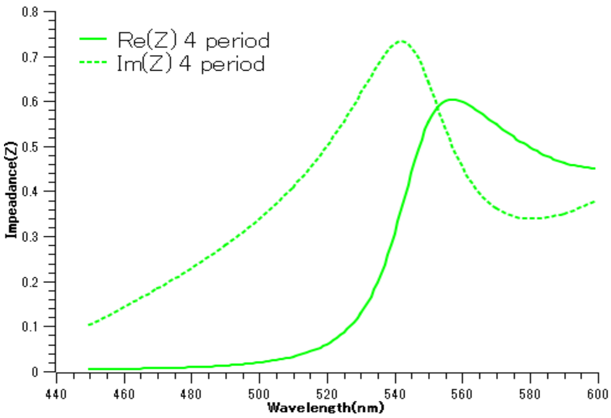
(c) 誘電率



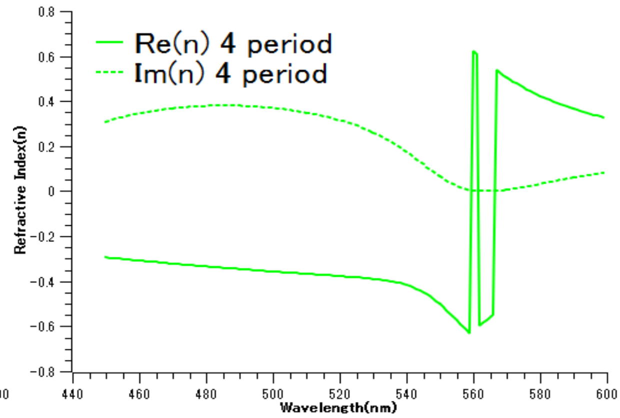
(d) 透磁率

図 5.1: 多層膜構造が 3 周期からなるときの光学定数の入射波長依存

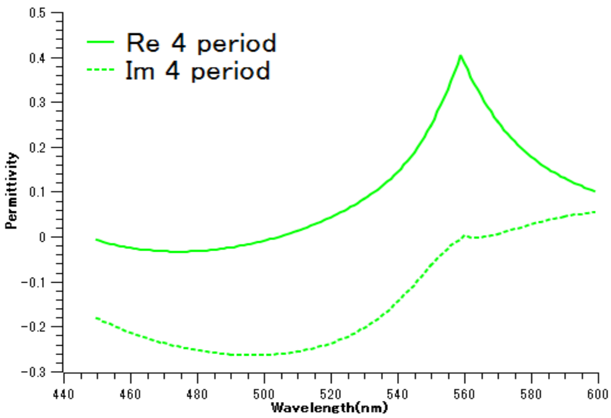
4 周期 (全膜厚 440nm）



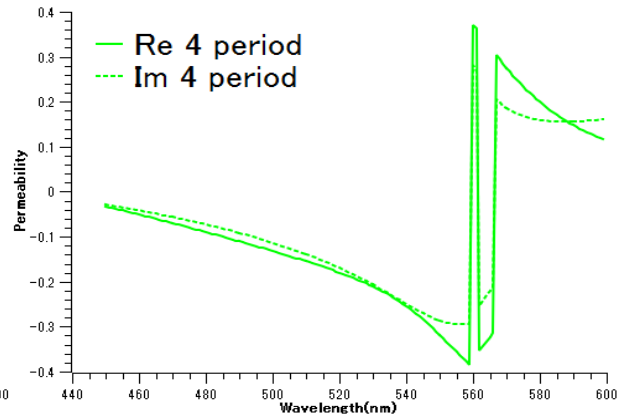
(a) インピーダンス



(b) 屈折率



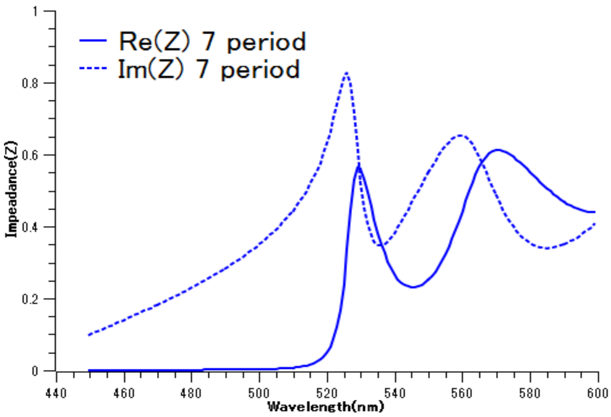
(c) 誘電率



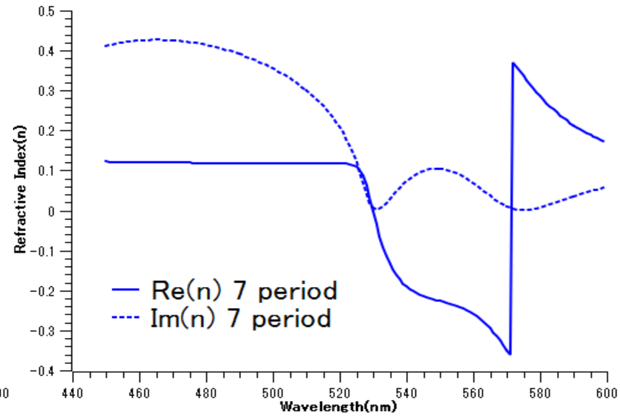
(d) 透磁率

図 5.2: 多層膜構造が 4 周期からなるときの光学定数の入射波長依存

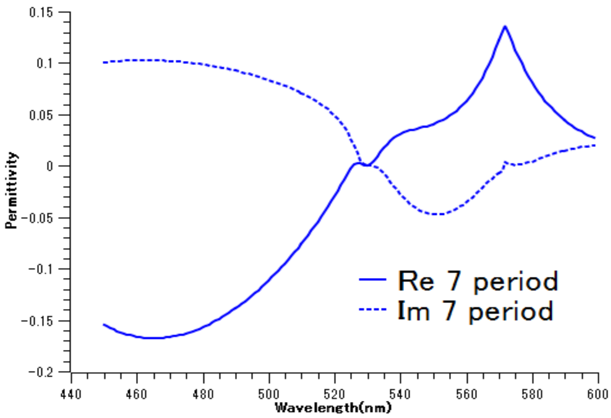
7 周期（全膜厚 770nm）



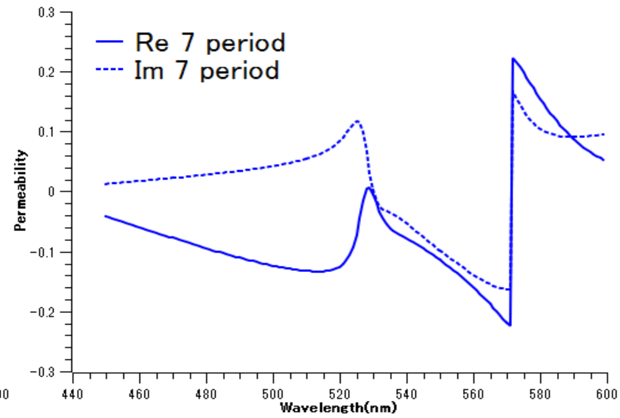
(a) インピーダンス



(b) 屈折率



(c) 誘電率



(d) 透磁率

図 5.3: 多層膜構造が 7 周期からなるときの光学定数の入射波長依存

第 6 章

結論

本研究では、新機能人工光学材料として注目されているメタマテリアルの実現のために有効誘電率と有効透磁率を制御できる多層膜を設計しその光学応答について解析を行い、s 偏光におけるブリュースター現象を実現した。

今回実験に使用したすべての計算プログラムは、プログラミング言語 Python を用いて作成した。また、多層構造における反射係数や透過係数を求める計算方法には透過行列法 (T-matrix 法) を使用した。そして、計算により得られた結果を用いて多層膜を 1 つの材料とみなした時の屈折率やインピーダンスを求め、その値から材料の有効誘電率と有効透磁率を求めた。

多層膜は、誘電体で高屈折率をもつ TiO_2、金属で吸収が少ないとされる Ag、誘電体で低屈折率を持つ SiO_2 の 3 つの物質を用いた 1 ユニットセルが 3 層からなるとした。また、計算の結果から、各膜厚の条件により反射率に違いが生じ、s 偏光でブリュースター角を持つ膜厚とそうでないものがあると分かった。結果的に、誘電体（TiO_2、SiO_2）の膜厚を 50nm、金属（Ag）の膜厚を 10nm とすると多層膜構造が 3 周期、4 周期、7 周期からなるときにブリュースター角が現れることを発見した。また、そのときの透過率はほぼ 1 に近い値をとり、金属による吸収があることが分かった。

また、入射する光の波長も反射に大きな影響を及ぼすことがシミュレーション結果から分かった。

このような誘電体金属誘電体の周期構造からなる多層膜における光学定数を解析したところ、ブリュースター現象の現れる角度において、屈折率などが大きく変化することが分かった。そして、この構造により、負の屈折率を実現できたと考える。

以上の結果から、s 偏光における無反射材料の設計に、成功したと思われる。ただ、今回の計算では数 100nm からなる多層膜を空気中に配置しある特定の波長の光を入射したときの光学応答を解析しブリュースター現象の実現に成功したが、実際にデバイスなどへの応用を考えた際には、より構造に厚みを持たせることや、多層膜を蒸着する基板によって反射率は変化してしまうので適当な基板を選択し無反射となる現象を生じさせることが、必要であると考えられる。今後は、金属を用いながらも、より吸収を少なく透過率を高め多構造の提案により、p 偏光と s 偏光の光を入射したときに同時に反射率がゼロとなる構造を見出すことができれば、光学領域において無反射となる新たな材料をつ

くることが可能であると期待できる。

参考文献

[1] M.Iwanaga,Opt.Lett.32,1314-1316(2007).

[2] J.B.Pendry,Phy.Rev.Lett.85,3966(2000).

[3] J.B.Pendry et al.,Microwave Theory and Tech. IEEE Trans.47,2075-2084(1999).

[4] S Anantha Ramakrishna,Rep. on Prog.Phys.68,449(2005).

[5] D,Schring et al.,Science America Association for the Advancement of science314,977-980(2006).

[6] D.Smith et al.,Phy.Rev.Lett. American Physical Society84,4184-4187(2000).

[7] V.G.Veselago,Sov.Phy.Usp.10,509(1968).

[8] 岡本隆之, 梶川浩太郎,『プラズモニクス-基礎と応用』, 講談社,2010 年.

[9] Zhang, Shuang and Fan, Wenjun and Panoiu, NC and Malloy, KJ and Osgood, RM and Brueck,Opt. Express,14,6778(2006).

[10] Valentine, Jason and Zhang, Shuang and Zentgraf, Thomas and Ulin-Avila, Erick and Genov, Dentcho A and Bartal, Guy and Zhang, Xiang,Nature,455,376(2008).

[11] Gabrielli, Lucas H and Cardenas, Jaime and Poitras, Carl B and Lipson, Michal, Nature Photon.3,461(2009).

[12] Militson,IH,J.OptSoc.Am.,55,1205(1965).

[13] Johnson,Peter B and Christy,Phys.Rev.B,6,4370(1972).

[14] D.Smith and S.Schultz and P.Markovs and C.M.Soukoulis,Phys.Rev.B,65,195104(2002).

謝辞

本研究を行うにあたり、研究室に快く迎えてくださった横浜市立大学国際総合科学部基盤科学コースのルジェロ・ミケレット教授に感謝いたします。理化学研究所の岡本隆之専任研究員を紹介してくださいました。そして、研究テーマについて大変丁寧に、具体的に指導してくださった、独立行政法人理化学研究所石橋極微デバイス工学研究室の岡本隆之専任研究員に深く感謝いたします。そして、貴重な時間を割いてプログラミングや研究方法についてアドバイスをくださったミケレット研究室の方々に深く感謝いたします。ありがとうございました。

付録

最終ページに、作成した計算プログラムを添付した。