

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 12 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010 ～ 2012

課題番号：22540338

研究課題名（和文）微視的非局所光学応答理論の部分的巨視化により実行できる未開拓問題の研究

研究課題名（英文）Study of untreated problems enabled by the partial macroscopic averaging of microscopic nonlocal optical response theory

研究代表者 張 紀久夫 (CHO KIKUO)
その他部局等、名誉教授

研究者番号：60013489

研究成果の概要（和文）：微視的非局所感受率に長波長近似を加えて巨視的応答を導く第一原理理論に関して（A）微視的成分を一部残しつつ巨視化するのが妥当ないくつかのモデルケースの数値的取り扱いを行うとともに、（B）単一感受率理論として可能な諸形式との比較を行い、電流密度を物質の巨視的変数とし、感受率の量子論的表式を与えているこの理論が他と比べて最も進歩した形であることを示した。

研究成果の概要（英文）：With respect to the first-principles theory of macroscopic EM response derived from the long wavelength approximation of microscopic nonlocal susceptibility, we performed (A) the numerical study of several model cases appropriate for the mixed use of micro- and macroscopic components, and (B) a comparison of this theory with other possible forms of single susceptibility schemes, which shows the natural and most advanced nature of this theory providing the quantum mechanical expression of susceptibility for current density as macroscopic matter variable.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2011 年度	900,000	270,000	1,170,000
2012 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	2,900,000	870,000	3,770,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：微視的応答、巨視的応答、部分的巨視化、キラル対称、メタマテリアル、電磁グリーン関数、

1. 研究開始当初の背景

研究代表者はこの研究提案の当初までに第一原理的な半古典的電磁応答理論の微視的形式「微視的非局所応答理論」を構築してさまざまなナノ構造物質の計算に適用するとともに、更にその基礎方程式に長波長近似を加えて（さまざまな電磁応答理論の階層構造の一端を構成する）巨視的電磁応答理論の

基本的枠組みを構築するという段階にあった。このようにして導かれる巨視的電磁応答理論は電気・磁気・キラル、縦・横の全ての線形応答を量子論的に与えられた「単一の感受率テンソル」で記述するという従来にない形式になっている。また導出の過程で量子論的基礎方程式に長波長近似を加えるという段階を含むことから、その近似の可否によっ

て微視的理論で記述すべき問題、巨視的理論として記述できる問題のほかに、微視的成分を残しつつ大部分の自由度を巨視的変数に置き換えて解析をする混合型の記述の可能性を追求できる形式でもある。この理論は電磁応答理論の長い歴史の中でも物理的・数学的論理性を徹底して追求した新しいものであり、巨視的マクスウェル方程式が物理学はもとより工学・化学・生物学等の幅広い分野で用いられていることを考えると、この新理論の特徴を広く世に知らしめて行くことは重要であると考えられる。この理論の特徴は単にこれまで知られていることの論理的整理だけではなく、磁気感受率・キラル感受率の論理的・微視的定義、単一感受率理論としての論理構造、共鳴振動数域における応答の精密な記述を与えたところにあり、メタマテリアルの研究で行われているさまざまな近似的物質定数操作の妥当性を判断する手段にもなると期待される。

2. 研究の目的

大別して二つの方向があり、一つはほぼ出来上がっている新理論の枠組を既存の巨視的応答理論と比べてその優位性と論理的・実質的一般性を明らかにしてゆくことと、もう一つは部分的巨視化による応答の取り扱いが適切と考えられる具体例の開発である。

(1) 第一の方向で重要なことは、単一感受率理論という新理論の特徴を(2つ以上の感受率テンソルを用いる)既存の巨視的応答理論とどのように関係づけるか、電気・磁気・キラル感受率というような量が独立に定義され得る状況があるならばそれは何か、過去に提案されている別な形の単一感受率理論との関係は何か、等を明らかにしてゆくことである。この問題はこれまでもある程度の考察を加えていたが、研究期間中に出席したメタマテリアル国際会議(Barcelona, 2011)の特別討論集会で従来のマクスウェル方程式の範囲で可能な単一感受率理論の形式を問題にした理論グループ(Chipouline, Symovski, Tretyakov: CSR)と議論を戦わせる機会があり、先方は「異なる形式間の相互変換ができない場合がある」とか「感受率の具体形が与えられない」などの不備を回避できない状態にあった。この議論を通じて明らかになった問題点を代表者の新理論との関係で如何に整理するかが研究代表者だけでなく上記の討論集会に参加した多数の研究者にとっても有意義な問題である。

(2) 第二の方向で当初から候補になっていた問題は「メタマテリアルにおける非局所応答の可能性」を探ることである。SRR (Split Ring Resonator)はメタマテリアルの中心的な基本構造の一つであるが、メタマテリアルとして機能は波長と比べて微小であることによる均質化近似に基づいて議論されている。即ち1個のメタ分子(SRR)の電磁応答にその密度をかけたものを系全体の応答関数とするが、メタ分子の配置によってはそれらの間の相互作用が大きくなり配列系の固有励起モードは系全体にコヒーレントに広がったものになり得る。このような場合の応答はもはや局所応答では取り扱えない。この可能性は原理的に考え得るものであるが、実際にどのようなメタ分子をどのように並べるとそれが実現されるかはわかっていない。メタ分子は普通には巨視的誘電率で記述されるとするが、その集合体には(微視的な系と同様な)非局所応答が生じ得ることは概念的に新しい要素である。そこで本研究ではSRRの周期系の分散関係を調べ、均質化近似の限界を調べる。また、長波長近似を超えたメタマテリアル系の記述について検討する。

また、キラルメタマテリアルもその巨大旋光性故に注目を集めているが、その起源については未だ明らかになっていないと言え難い。そこで過去に行なってきた研究に基づいてその起源を明らかにすることも目的とする。

(3) 微視的応答と巨視的応答が混じった問題を扱う際に有用な理論的手段は、先ず巨視的誘電率で記述される誘起分極を電磁場に繰り込んだ系のグリーン関数を定義し、この繰り込まれた電磁場の中で起る微視的な非局所応答を計算するという方法である。これは薄膜や球の中の共鳴準位などを扱う際にはすでに行われていてその有効性が知られているが、この方法は試料の形状に制約があって球や薄膜などの対称性が良い場合以外ではグリーン関数を解析的に求めることができない。この制約を回避する方法は数値的にグリーン関数を求めることであるが、一般の形状・サイズに対して任意の始点・終点・振動数に対してグリーン関数を簡便に与える方法は知られていないので、それについての数値解析方法を開発すれば、さまざまな問題に応用できる。

3. 研究の方法

- (1) 単一感受率理論という側面で従来型のマクスウェル方程式と新理論を比較する問題の焦点は、巨視的なマクスウェル方程式の中の物質変数を電流密度(\mathbf{J})以外のどんな変数で表すかという点で、通常は電気・磁気分極(\mathbf{P}, \mathbf{M})という2変数で表現するが、単一感受率理論としては物質変数を1つにする必要がある。前項(1)に述べた理論グループ CST は $\mathbf{J} = \partial \mathbf{P}' / \partial t$, $\mathbf{J} = \text{rot } \mathbf{M}'$ で定義される新変数 \mathbf{P}' , \mathbf{M}' を用いる形式を従来型と比較して議論したが、この定義式では電荷保存と電気分極(対電荷密度)の定義から生じる制約をもっと正確に考慮する必要がある。その見直しを行った上で考え得る4つの異なる形式を比較し、相互の変換の仕方、それぞれの場合の感受率および分散方程式を明らかにする。
- (2) 「メタマテリアルにおける非局所応答の可能性」については、メタ分子として一定形状の SRR を考え、それを周期系に対して電磁応答や固有モードの分散関係を計算する。非局所効果は強い分散を持つ固有モードとして現れるはずであるが、分散の強弱はそのモードの幅との兼ね合いで決まるので、それが明らかになるような構造と配置を見出すことが重要である。この種の計算は大きな数値計算になるので、その解析方法の有効性も追求しながら計画を進める必要がある。キラルメタマテリアル系も含めて電磁場の散乱の解析には scattering matrix method 及び FD-TD 法を用いた。また周期系の分散関係の解析には通常の写真結晶の分散関係を解析する平面波展開法も用いた。
- (3) 一様な誘電率を持つ任意形状の媒質に対するグリーン関数の数値的計算プログラムに関しては、分極を一様な背景部分と(共鳴分極その他を含む)残りの分極に分け、背景部分を電磁場に繰り込んだマクスウェル方程式において、一様分極を与える局所感受率のデルタ関数を完全系展開して非局所的な形に書きなおすと(積分方程式の積分核が分離型になるため)、これを繰りこんだグリーン関数が解析的な形に求められる。与えられた形状の空間における完全系の近似としてメッシュに細分したものを考え、完全系の関数は各セル内で1、外でゼロ、というものを採ることとする。各セルの誘起分極は縦横の電磁場を介して相互作用するので、それを考慮した(セル表

示した)グリーン関数成分の間の方程式を、電磁場の始点・終点および振動数の関数として解いたものを出力するプログラムを作成する。

4. 研究成果

- (1) 巨視的なマクスウェル方程式を単一の感受率テンソルによって記述する形式としては物質変数として電流密度 \mathbf{J} 、前項で定義した拡張した電気分極 \mathbf{P}' 、拡張した磁気分極 \mathbf{M}' のどれを用いるかによって異なる形式に分かれる。CST は Landau-Lifshitz form (\mathbf{P}' を使用)、Anapole form (\mathbf{M}' を使用)を通常の \mathbf{P} , \mathbf{M} による Casimir form と比較し相互の関係を論じたが、Anapole form から他の形式への変換ができないことで困難に突き当たっていた。この原因は変数の選択の仕方にある。そもそも変数 \mathbf{J} に $\text{div } \mathbf{J} + \partial \rho / \partial t = 0$ と $\text{div } \mathbf{P}' + \rho = 0$ に起因する非一意性 (\mathbf{J}, \mathbf{P} に任意の関数の rot を加えても構わない)があるので、 \mathbf{J} を2つの変数 \mathbf{P} , \mathbf{M} に分けることが示唆されるのであるが、この制約はベクトルの横(T)成分にのみ及ぶものであって縦成分は非一意性を持たない。従って新変数は横成分の関係式として $\mathbf{J}_T = \partial \mathbf{P}'_T / \partial t$, $\mathbf{J}_T = \text{rot } \mathbf{M}'_T$ のように導入されるべきである。この関係は容易に逆に解けるので、 \mathbf{J}_T が分かれば \mathbf{P}'_T と \mathbf{M}'_T が容易に求められる。代表者の新理論によれば \mathbf{J} と電磁場の間の構成方程式が一意的に求められているので、その結果を上書き換えた式に代入すれば \mathbf{P}'_T と \mathbf{M}'_T に対する構成方程式も直ちに求められる。このようにして、代表者の新形式(以下 natural form と呼ぶ)、Landau-Lifshitz form、Anapole form のいずれも互いに変換し合う単一感受率理論であることが示された。構成方程式がどの場合も \mathbf{J} で書けば同じになることから、分散方程式はどの形式で書いても同じになること、具体形は代表者の理論で与えた一般形を用いればよいこと、が分かる。さらに既に著書中で論じたように、代表者の単一感受率はその量子論的表式を書き換えて Casimir 形式にすることができる。これは逆向きの等価な書き換えが可能なのでこの Casimir 形式は(現象論である通常の Casimir 形式と違って)単一感受率理論の一形式と考えることができる。結局4つの形式が考えられることになるが、馴染みのない \mathbf{P}'_T や \mathbf{M}'_T ではなく常識的な変数 \mathbf{J} でを用いるという点と、感受率の第一原理的な表式を与えているのは natural form だけであることから、この形式が最も進ん

だ単一感受率理論であると言える。

- (2) 「メタ材料における非局所応答の可能性」については、split-ring 共振器の単純立方格子系において電磁場の分散関係が極端に強い例を見出した。図1で見られるように平らなバンドに加えて強い分散関係を持つバンドが重なって存在する。このような研究は等価回路を用いた解析を除くとほとんど無い。この分散の起源についてはさらなる研究を要するが、分散の強いモードは横波成分が強く、分散の弱いモードは縦波成分が強いことが分かった。この例はメタ材料系での均質化近似の限界を議論する端緒を開くものと期待される。

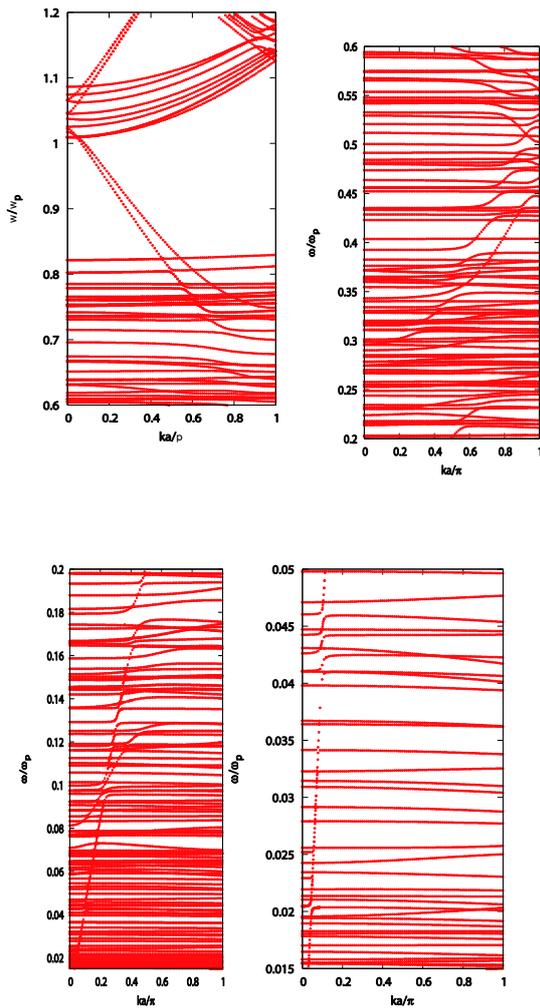


図 1 split-ring 共振器単純立方格子の分散関係

SRR2次元周期系に対する電磁場の分散関係を調べた。最初の動機は現存する作成可能な試料との比較であったが、split-ring が基板に対して寝そべっている構造ではほとんど分散が無いことが分かり、次に split-ring が基板に対して立っている構造について調べ、ほとんど分散が無いバ

ンドに加えて強い分散を持つバンドを見出した。但し、予想以上に CPU 時間がかかり、解析手法も含めて更なる検討が必要である。研究期間を通じて、FD-TD 法の Bloch 状態への実装を試みたが、膨大なメモリと CPU 時間を必要とし、通常のワークステーションでは現実的な計算には至らなかった。

また、2次元キラル周期薄膜の共鳴的な光学活性は透過率、反射率に現れる極端に鋭いピークと窪みを伴うことに気づいていた（図2）が、この共鳴構造が空気・試料及び試料・基板界面での Fabry-Perot 的な多重反射により薄膜中の多重散乱を増幅させていることによることを見出した。増幅された多重散乱によって周期薄膜内部では高次の回折光が増幅されていることも分かった（図3）。この事が共鳴的な偏光の回転を生み出しているが分かった。

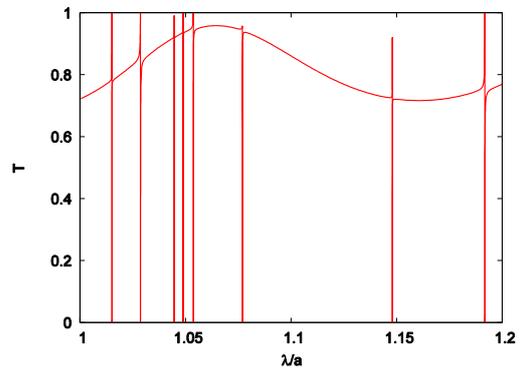


図 2 透過率

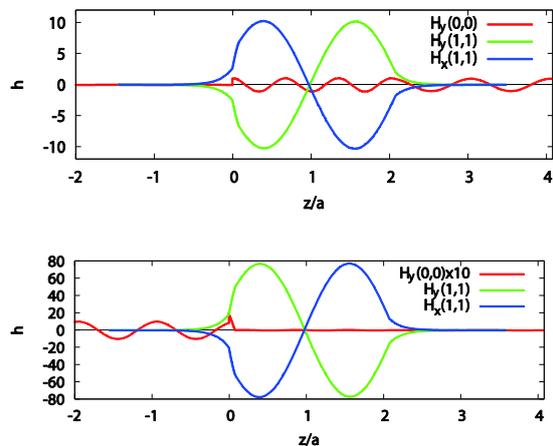


図 3 回折光の磁場成分

- (3) 「一様な誘電率を持つ任意形状の媒質に対するグリーン関数の数値的計算プログラム」に関しては、グリーン関数と応答電磁場を与える定式化が早期にでき

ていたが、満足のゆく数値的結果が得られずにいた。最近になってその理由が、メッシュに分けたセルの間の電磁的相互作用を与える行列要素の評価において(横電磁場経由の成分は正しく記述されていたが)縦電磁場経由の相互作用が不完全であったため、ということが分かった。その後の計算には大きな困難はないが、この方法の信頼性を確かめるにはまだ多くのモデル計算を積み重ねる必要がある。

この定式化は DDA (discrete dipole approximation) として行われている方法を第一原理的に作り直すことに相当するが、DDA 計算でよく行われているように「セルの感受率を Clausius Mossotti の形に仮定する」というようなことは正当化されないことがわかる。媒質の感受率はセルに分ける前に定義した物質の感受率であって、セル間の相互作用はグリーン関数の計算において自動的に考慮されるので、Clausius Mossotti の感受率を用いることはセル間の相互作用を2重に勘定することになる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

1. K. Cho, Landau - Lifshitz theory of single susceptibility Maxwell equations, Proc. 7th int. congress on advanced electromagnetic materials in microwaves and optics, Bordeaux 2013 (accepted)
2. 張 紀久夫, 物質の電磁応答: ミクロからマクロへ、物性研究 **97** (2012) 1005 - 1030
3. 張 紀久夫, 物質中の Maxwell 方程式の再構築, 日本物理学会誌, **66** (2011) 456 - 458
4. K. Cho, Microscopic expression of chiral susceptibilities, Proc. 5th int. congress on advanced electromagnetic materials in microwaves and optics, Barcelona, 2011, pp.672-674,
5. 張 紀久夫, 巨視的マクスウェル方程式の単一感受率理論: キラル対称効果および磁気感受率の定義、日本磁気学会第 175 回研究会資料, 2010. 12. 17, pp. 11-16

[学会発表] (計 16 件)

1. K. Cho, Landau - Lifshitz theory of single susceptibility Maxwell equations, Proc. 7th int. congress on advanced electromagnetic materials in microwaves and optics, Bordeaux 2013 (accepted)
2. 張 紀久夫, Landau - Lifshitz の単一感受率理論、日本物理学会、広島大学、2013.3.26
3. 大淵泰司, Split-Ring 共振器周期系の電磁場応答と分散関係、日本物理学会、広島大学、2013.3.26
4. K. Cho, Metamaterials study from physics point of view: First-principles theory of macroscopic "electric, magnetic, and chiral" susceptibilities, 2nd Japan - Korea Metamaterials Forum, Tsukuba, 2012.6. (invited)
5. 大淵泰司, 張 紀久夫, Split-Ring 共振器周期系の電磁場の分散関係 II、日本物理学会、関西学院大学、2012.3.24
6. 張 紀久夫, 物質の電磁応答: ミクロからマクロへ、関西光物性研究グループセミナー (招待)、大阪大学、2012.2.3
7. 張 紀久夫, 巨視的マクスウェル方程式の単一感受率理論、豊田理化学研究所フェロー研究発表会 (招待講演)、長久手、2011.11.30
8. K. Cho, Microscopic Expression of Chiral Susceptibilities, 5th Int. Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics, Barcelona, 2011.10.12
9. 大淵泰司, 張 紀久夫, Split-Ring 共振器周期系の電磁場の分散関係、日本物理学会、富山大学、2011.9.23
10. 張 紀久夫, キラル対称系 に対する内殻共鳴 X 線回折の第一原理理論、日本物理学会、富山大学、2011.9.23
11. 大淵泰司, 中屋翔揮, 2次元カイラル周期薄膜の光学活性と内部電磁場の振舞い II、日本物理学会、2011. 9. 23、富山大学
12. 張 紀久夫, 物質の電磁応答: ミクロからマクロへ、物性若手夏の学校 (招待)、富士吉田、2011.8.2 - 4
13. 張 紀久夫, 単一感受率テンソルによる巨視的マクスウェル方程式、日本応用物理学会 (招待)、山形大学、2011.8.31
14. 大淵泰司, 中屋翔揮, 2次元カイラル周、日本物理学会、新潟大学、2011.3.25
15. 大淵泰司 2次元フォトニック結晶薄膜の透過率・反射率に現れる極端に鋭い共鳴構造とその起源、日本物理学会、大阪府立大学、2010.9.25
16. Y. Ohfuti, Novel resonant structures in

transmission and reflection by a very thin two-dimensional photonic crystal on a substrate, 4th Int. Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics, Karlsruhe, 2010 Sept.16

〔図書〕（計 2 件）

1. K. Cho, Reconstruction of macroscopic Maxwell equations: A single susceptibility theory, (Springer Verlag, 2010 Oct.) pp.1-135,
2. 張 紀久夫, メタマテリアル II, (CMC 出版, 2012) 担当章「電磁応答理論の階層構造に適合する巨視的マクスウェル方程式」, pp. 59 - 66

6. 研究組織

(1) 研究代表者

張 紀久夫 (CHO KIKUO)
大阪大学名誉教授
研究者番号 : 60013489

(2) 研究分担者

大淵 泰司 (OHFUTI YASUSHI)
電気通信大学、情報理工学（系）研究科
研究者番号 : 10201980