# 自然の結晶でおこる光の負屈折現象の波動光学序論

黒田 規敬<sup>†</sup>

透磁率と誘電率がどちらも負の値をもつよう作られたメタマテリアルで光の屈折率が負 値になり,波動としての光波とエネルギー流としての光線が互いに逆方向に伝播することが近 年明らかになったが,類似の負屈折現象が異方性の強い自然の結晶でも起こり得ることが理論 的に予見されている.その上,ある場合には光波が正の屈折率で屈折するにもかかわらず,光 線があたかも負の屈折率に従うかのように偏向して伝播する,カウンターポジションと呼ばれ る現象が起こり得ることが知られている.本稿では単軸異方性をもつ光学結晶についてそのよ うな特異な波動光学特性を,誘電率テンソルに基づいて系統的に解明した研究結果を解説する. また,実際にその結果をサファイアの異方的な格子振動による多モードの異常誘電分散に適用 し,負屈折およびカウンターポジションにおいて光波と光線がどのように振る舞うかを明らか にするとともに,ポインティングベクトルのスペクトルを求めることにより,それぞれの場合 に光線がどのように結晶中に進入していくかを検証した研究についても詳しく述べる.

## 1. はじめに

2001 年にカリフォルニア大のシェルビーら [1]は特殊な複合媒質を用いることにより、ソ連レ ベデフ物理学研究所のベセラゴが 1968 年に理論 的に予言していた[2], 光の負屈折 (negative refraction)の現象をマイクロ波で実証した.通常, 光は光源から放射されて媒質中に伝播していく が,負屈折をおこす媒質では光は暗黒から光源に 向って進行してくるという.これは光についての 通念を根本的に覆すため,シェルビーらの研究は 世界の科学界に大きなインパクトをもたらした. 彼らが用いた複合媒質は英国インペリアルカレ ッジのペンドリーらが提案していたもの[3]を元 にして,シェルビーと同じカリフォルニア大グル ープのスミスらが 2000 年に作成に成功した[4]も のである.ペンドリーはさらに,負の屈折率をも った平板媒質は収差のないレンズの作用をする ために,光の波長よりも微細な物体を識別するこ とができることを論じ,これをスーパーレンズあ るいはパーフェクトレンズと呼んだ[5].

ここで光の屈折のしくみを思い返しておこう.光は波動として空間を伝わる高周波の電磁場

である.真空中では周波数によらず一定速度  $c_0 = 3 \times 10^8$  m/s で伝わるが,媒質の中では周波数が同じでも,速度と波長は媒質によって変わる.均質な 媒質では,光の速度 v と波長  $\lambda$  は

$$\frac{c_0}{v} = \frac{\lambda_0}{\lambda} = n \tag{1}$$

という共通の比例関係をもつ.ここでん はこの 光と同じ周波数で真空中を伝わる光の波長を表 す. $c_0/\lambda_0$ が周波数である.係数 n は媒質で決ま り,光の速度と波長が真空のときの 1/n になる. その結果,接触した二つの異なる媒質の境界面か ら進入した光は特定の方向に折れ曲がって進行 して行く.折れ曲がる角度は,境界面上のどこに おいても,入射光と透過光の波面の位相が同じで あるということで決まる. つまり, 一つの光波が 境界面に入射したとき,その波の節は波長と入射 角で決まる一定の繰り返し間隔で境界面上に縞 状に並んで移動して行くが,その時それらの節は 透過波の節にもなっている.節だけでなく,腹や その他のどの位相状態についても同じことが言 える.このため,いま,入射側と透過側の媒質の *n*をそれぞれ *n*<sub>i</sub>,*n*<sub>t</sub>と書き,入射角と屈折角をそ

れぞれ $\theta_i$ ,  $\theta_i$ とすると, それらの間に

$$n_{\rm i}\sin\theta_{\rm i} = n_{\rm t}\sin\theta_{\rm t} \tag{2}$$

という関係が成り立つ.このことから,nは媒質の屈折率と呼ばれ,式(2)はスネル則(Snell's law) としてよく知られている.

レンズを用いると光の屈折効果で光線を絞 ったり、また、離れた物体の影像を結ばせること ができる.レンズは透明な光学材料を凸面または 凹面の形状に加工して作られるが,ある場合には 平行平板を用いても結像させることができるこ とをベセラゴは上に引用した研究[2]で論じた.あ る場合とはその物質が負の屈折率をもつ,つまり, 式(1)において v, λの値が負となる場合である.こ れは屈折光が平板の奥から境界面に向けて逆行 して進むことを意味している.冒頭で負屈折を起 こす媒質では光が暗黒から光源に向って進行し てくると述べたのはこの状況を指している.光は 平板の反対側の面でまた向きを反転させて負の 屈折率で出射し,進んでいく.この性質を利用し て, 平板の前に置いた物体の実像を結ばせること ができる これがスーパーレンズである<sup>§</sup> .さらに , ドップラーシフトやチェレンコフ効果も逆にな るという,既成の物理学の概念を覆す事態が予想 されたが,当時は負の屈折率をもつ物質が実在し なかったために,ベセラゴの研究は多くの関心を 集めなかった、アルメニア・エレバン州立大のエ リツィアンが実際の結晶でも異方性があれば類 似の現象が起こり得ることを指摘した[6]が,やは り強い関心がもたれなかった.

冒頭で述べた実験でシェルビーらが用いた 複合媒質は,銅の細線と外径5mm程度の銅の分 割リング共振器を光リソグラフィー技術によっ て薄いボードの表裏に等間隔に配列させて形成 した後,それらを重ね合わせたものである.この ような,新しい機能性をもたせることを意図して 作られた人工的な複合材料がメタマテリアル (metamaterial)と呼ばれるようになり,負屈折メタ マテリアルは世界中の多くの光科学者の関心を 集めることとなった.以来,配列させた金属ロッ ドや,フォトニック結晶,グラフェンシート,キ ラル体,さらには半導体超格子なども包含して盛 んに研究されている.

負屈折メタマテリアルの出現は直ちに異方 性結晶への関心も喚起し,エリツィアンのアイデ アを拡張して,結晶学的に異なる種々の結晶面に 対する直線偏光入射の屈折特性が世界の各地で 検討された[7,8].異方性結晶では光学誘電率も異 方性をもつ.それらのうち,異なる光学主軸方向 で誘電率の値の正負が異なるような結晶で,メタ マテリアルに類似した負屈折などが現れ得るこ とが論じられた[9-15].

メタマテリアルについては優れた英文レビ ューがいくつかあり[16,17],邦文でも単行本[18] や応用研究の解説が多数ある[19-24].しかしなが ら,異方性結晶では屈折の形態が多様で変化に富 むにもかかわらず,英文,邦文ともにまだほとん どレビュー記事がない.光学結晶の利点は赤外か ら可視光にわたる,文字通り光の領域でこれまで 知られていなかった興味深い現象が起こること である.そこで次章で波動光学におけるいくつか の基礎概念を導入すると共にメタマテリアルで の負屈折の概要を紹介した後,3章以降で,自然 の異方性結晶において起こる特異な屈折特性を, サファイアとして知られる三方晶の*α*-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 結晶 について行った筆者らの研究の結果[15]を中心に して具体的に述べよう.

### 2. メタマテリアルで負の屈折が生じる理由

光が伝える電場の強さをベクトル *E* とし, 磁場の強さをベクトル *H* とすると, *E* と *H* は常

<sup>&</sup>lt;sup>§</sup>スーパーレンズには負屈折体の光学反射特性も重要 な要素となる.稿末付録A6,A7で負屈折体を含む磁 性誘電体の光反射率について述べる.

に一体で媒質中を伝わり,その波動は平面波 (plane wave)

$$\boldsymbol{E} = \overline{\boldsymbol{E}} \exp[i(\boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{r} - \omega t)] \quad , \quad (3a)$$

$$\boldsymbol{H} = \boldsymbol{H} \exp[i(\boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{r} - \omega t)] , \qquad (3b)$$

でよく表すことができる.ここで $\overline{E}$  と $\overline{H}$  は一定 強さの電場および磁場ベクトルであり,k,r, $\omega$ およびt はそれぞれ,波数ベクトル(wave vector), 位置ベクトル,角周波数および時刻である.光が 進む方向の単位ベクトルをuとして,波数ベクト ルk は

$$\boldsymbol{k} = \frac{2\pi}{\lambda} \boldsymbol{u} \,, \tag{4}$$

と定義される.式(1)を用いて式(4)は

$$\boldsymbol{k} = \frac{2\pi}{\lambda_0} \boldsymbol{n} \quad , \quad \boldsymbol{n} = n\boldsymbol{u} \tag{5}$$

と書き変えることができる.nは屈折率のベクト ル表示である.3章以降で詳しく述べるように, 異方性結晶では,nは光の周波数だけでなく,進 行方向と偏光にも依存する.

図1のように,任意のkについて,それに 垂直な一つの面と空間の原点との間の垂直距離 を $r_0$ とすると,面の上のどの位置についても  $k \cdot r = kr_0 (= -定)$ であるから,E,Hは面上のど こでも同じ位相で一様に振動している.式(3)の波 動が平面波と呼ばれるのはこのためであり,nが 位相平面の進む向きと速度を規定する.式(3)より その速度  $dr_0/dt$  は $\omega/k$  に等しく,これを位相速 度(phase velocity)という. $c_0 \ge v$  はこの位相速度 に他ならない.

波数ベクトルkは一つの波動の進む方向と その方向の単位距離当りの波の繰返し頻度(= 波 数)を規定するが,波動の量子性に由来して,もう 一つの重要な意味をもっている.つまり,一般に 波動は粒子の性格を併せもっている.いま,プラ ンク定数を h として h/2π=h とすると,一つの波 は hωのエネルギーをもって hk の運動量で動い ている粒子の集団とみなすことができる.実際の 粒子と違ってこの粒子は質量と大きさをもたな いが,エネルギーと運動量はそれぞれに実際の粒 子と同じ保存則にしたがう.この状態を準粒子と いい,光の場合,光量子または光子(photon,フォ トン)と呼ばれる.力学によれば,一つの剛体球が 滑らかな壁に斜めに衝突したとき,運動量の正接 成分(壁面に平行な成分)は保存される.式(2)のス ネル則は異質な二つの媒体の間の境界面を通り 抜ける光量子についてこの保存則を表している わけである.当然,境界面で反射する光量子につ いても同じ保存則が成り立ち,反射角が入射角に 等しいという,もう一つのスネル則を与える.

電磁気学によれば,実電荷がなく,電流も 流れない媒質中の交流電磁場は次のマックスウ ェル方程式

$$\operatorname{rot} \boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} = -\hat{\mu}\mu_0 \frac{\partial \boldsymbol{H}}{\partial t}, \qquad (6a)$$

rot 
$$\boldsymbol{H} = \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t} = \hat{\varepsilon}\varepsilon_0 \frac{\partial \boldsymbol{E}}{\partial t}$$
 (6b)

に従う.ここで $\hat{\mu}$ ,  $\hat{\epsilon}$ は媒質の比透磁率および比 誘電率をそれぞれ表す.これらは一般に,電場ま たは磁場の方向と,それらの外場による誘導D,Bの方向との,二つの方向で指定される2階のテン



図1 k に垂直な平面上の位置 r における E および H.

ソル量である .  $\mu_0$ ,  $\varepsilon_0$  はそれぞれ,真空の透磁率 と誘電率であり, $1/\sqrt{\mu_0\varepsilon_0} = c_0$ である.式(6a), (6b)に式(3a),(3b)の *E*, *H* を代入すれば

$$\boldsymbol{k} \times \boldsymbol{E} = \omega \hat{\boldsymbol{\mu}} \boldsymbol{\mu}_0 \boldsymbol{H} , \qquad (7a)$$

$$\boldsymbol{H} \times \boldsymbol{k} = \boldsymbol{\omega} \hat{\boldsymbol{\varepsilon}} \boldsymbol{\varepsilon}_0 \boldsymbol{E} \quad , \tag{7b}$$

が求まる.記号×はベクトル積を意味する.

物質によって光の屈折率がさまざまに変わ る理由を理解するために,この章では等方的な物 質を考えよう.等方媒質では比透磁率と比誘電率 はどちらもスカラーとなり,ほとんどの場合それ らは正の値をとる.そこでこれらを単に $\mu$ ,  $\varepsilon$  と 書き, $\mu$ >0, $\varepsilon$ >0としよう.そうすると,式(7a), (7b)より,k×E // H, H×k // E であるから,実 数部と虚数部のどちらについても,E,H,kは 互いに直交した右手系をつくることが分かる.式 (7a)のHを式(7b)に代入し, $E \cdot k = 0$ であるこ とを考慮して整理すると

$$k^{2} = \mu \epsilon k_{0}^{2} , \ k_{0} = \frac{\omega}{c_{0}} = \frac{2\pi}{\lambda_{0}}$$
 (8)

が導かれる.式(5)との比較より,明らかに

$$n^2 = \mu \varepsilon \tag{9}$$

である.このようにして,屈折率は光による媒質 内での電磁誘導に起因することが分かる.

nは通常正の値で定義される.しかし,も しもある媒質で $\mu$ >0であるが $\varepsilon$ <0であり,また, 別の媒質で $\varepsilon$ >0であるが $\mu$ <0のとき,光は媒質 中を伝播することができない.なぜなら,前者で は式(7a)に応じて k×E とH が平行で同じ向き に保たれても,式 (7b)に反してH×k と $\varepsilon$ E が互 いに反平行になり,また後者では,式(7b)に応じ てH×k とEが同じ方向に向くとk×E と $\mu$ Hが 反平行となって式(7a)に反するからである.この とき,いずれの媒質でも,式(9)より分かるように, nは虚数となっている.

これに対して、ベセラゴは $\mu$ ,  $\varepsilon$ のいずれも が負の値ならば、片方のみが負のときに生じる齟 齬が解消され, E, H, k は直交左手系となって再 び光として媒質中を伝播することができるとい う、これまでの電磁気学や波動光学、あるいは結 晶光学で見過ごされてきた、驚くべき事実に気づ いた.この直交左手系は直交右手系でのkの方向 が反転したものであり、現実の直交右手系でそれ はn < 0 に見えることを意味する、そこで $\mu$ ,  $\varepsilon$ の値の正負にかかわらず成り立つよう、式(7a)お よび(7b)に基づいて式(9)の解を求めると、n は

$$n = \sqrt{\mu}\sqrt{\varepsilon} \tag{10}$$

と表されるべきであることが分かる.数学的証明 は本稿末尾に記載の付録 A1 に記した.

正屈折と負屈折の比較を図 2 に示す.図 2(a)が通常の正屈折であるが,いま,屈折率が正 の媒質から負の媒質に光が斜入射したとすれば, 図 2(b)のように,入射位置から見た屈折光の位相



図2 等方媒質での正屈折(a)と負屈折(b).波数ベ クトル k (緑矢印)と時間平均ポインティングベ クトル<S>(赤矢印)の肩付添字(i), (r)および(t) はそれぞれ入射光,反射光,および屈折光を表す.

速度が負となって, k の垂直成分が入射光とは逆向きになると同時に,式(2)のスネル則により, 屈

折角も負になる.正負屈折いずれの場合でも,前 に述べた kの正接成分の保存則のため,斜入射し た光波が境界面で後方に折り返して進入して行 くように屈折することはない.

ここで、光波(wave)と光線(ray)の違いに留意 しておこう.われわれが目で感じる「光」は式(3) の光波そのものではなく、光波によって運ばれる 光のエネルギーの流れであり、通常これを光線と 言っている.つまり、水流が水分子の集団の流れ であるように、光量子の集団の流れが光線である. この流れはポインティングベクトル(Poynting vector) *S* = *E*×*H* で与えられ、交流電力の場合[25] と同様に、高周波で振動的に変動する実の*E* と実 の*H* のベクトル積の時間平均

$$\langle \boldsymbol{S} \rangle = \langle \operatorname{Re} \boldsymbol{E} \times \operatorname{Re} \boldsymbol{H} \rangle$$
  
=  $\frac{1}{2} \operatorname{Re}(\boldsymbol{E} \times \boldsymbol{H}^*)$  (11)

が実際的な光の強さである.\*は複素共役をとる ことを意味する.*E*の単位が V(ボルト)/m,*H*の 単位が A(アンペア)/m であるから, <*S*> は光線 に垂直な単位断面積を横切って単位時間に流れ る平均のエネルギー, W(ワット)/m<sup>2</sup>, である.

<S>が  $E > H^*$ のベクトル積で与えられ ることから明らかなように,光線は常に E, $H^*$ と共に,それらのベクトルがつくる面に垂直に右 ねじの方向に進む.したがって,負屈折のときに も屈折光の光線は第2媒質内に進入していく.先 に述べたように、等方的な負屈折媒質ではE,H,kは直交左手系となるので,<S>の方向はちょうど kと反平行となる.その結果,図2(b)の $<S^{(t)}>$ が 示すように,進入した光線は入射した向きとは逆 の方向に折れて後ろ向きに進む.この点で正屈折 と根本的に異なっている.

以上が等方媒体でおこる負屈折の基本原理 の概要である.次章ではサファイアのような単軸 異方性結晶に拡張して光の屈折を考察しよう.

## 3. 単軸異方性結晶

# 3.1 主光学配置での光波の分散関係

多くの光学材料は三方晶系,正方晶系,六 方晶系などの結晶構造をもち,それらは単軸結晶 に属する.単軸結晶の  $\hat{\mu}$ ,  $\hat{\varepsilon}$  は c 軸を z 方向とし た直交座標系で次のように書ける.

$$\hat{\mu} = \begin{pmatrix} \mu_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \mu_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{\parallel} \end{pmatrix}, \quad (12a)$$

$$\hat{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{\parallel} \end{pmatrix}.$$
 (12b)

ここで添字の || は外場と誘導が共に *c* 軸方向を 向いていることを表し,⊥ はそれらが共に *c* 軸に 垂直であることを表す.

いま , c 軸に垂直な面または c 軸に平行な面 で平らにカットされた単軸結晶が図 3 のように, そのカット面で,均質で透明な媒体に接している とし,その接触面に媒体側から直線偏光の光が主 光学配置(principal optical configuration)で入射した 場合を考察しよう.結晶の異方性の役割を明確に するために,ここでは結晶に接した媒体は等方的 であるとする.直線偏光とは Eベクトルが特定の 方向に平行な向きで振動する光である.また,主 光学配置は図3に示した直交座標軸x,y,zのどれ か一つの方向に結晶の c 軸を向けた配置を指す. したがって,どの配置でも $\hat{\mu}$ , $\hat{\varepsilon}$ のテンソルは式 (12a),(12b)で  $\mu_{\parallel}$  と  $\mu_{\perp}$  および  $\varepsilon_{\parallel}$ と  $\varepsilon_{\perp}$ を入 れ替えた,対角型となる.これらの配置は sxz ま たは *pxz* と表される .*s* は *E* ベクトルが入射面に 垂直な TE 偏光を ,そして p は E ベクトルが入射 面内にある TM 偏光を , それぞれ表している . -

方, *x*, *z* は入射面が立つ方位と結晶表面に垂直な 方位を, それぞれ指定する.単軸結晶は *c* 軸の周 りの回転に対して光学的に対称なので, *c* 面内の どの方向も *a* 軸と同等とみなすことができる.そ のため,主光学配置は *sac*, *pac*, *saa*, *paa*, *sca*, および *pca* の 6 通りある.



図3 単軸結晶の平滑な表面に斜入射したp偏 光の光の反射と屈折の模式図.図中各ベクトル の肩に付けた添字(i),(r)および(t)はそれぞれ 入射光,反射光および透過光であることを示 す.各ベクトルの長さは任意に描かれている.

2章で見たように,等方媒体中では $E \ge H$ が直交しているので,入射光のEが入射面に垂直 に偏光していれば,H は入射面内にある.また, E が入射面内にあるとき H は入射面に垂直にな っている.電磁気学上の連続性によれば,1つの 媒体から別の媒質に光が入射するとき $E \ge H$ の どちらについても,境界面に平行な成分は境界面 の表裏で同じ値をとる.したがって,主光学配置 では入射光の偏光性が結晶中でも保たれ,そのた め図3のように,透過面は入射面と同一の平面と なる.そこで結晶の $\hat{\mu}$ , $\hat{\varepsilon}$ の対角要素の指標をそ れぞれに対応する座標軸x,y,z に書き替えて式 (7a)および(7b)に適用すると, s 偏光配置では

$$\frac{k_x^2}{\mu_z} + \frac{k_z^2}{\mu_x} = (\frac{\omega}{c_0})^2 \varepsilon_y$$
(13)

という関係式が得られ, p 偏光配置では

$$\frac{k_x^2}{\varepsilon_z} + \frac{k_z^2}{\varepsilon_x} = (\frac{\omega}{c_0})^2 \mu_y \tag{14}$$

という関係式が得られる[付録 A2] .  $\mu_{x,y,z} \& \mathcal{E}_{x,y,z}$ は物性量であるから,一般に $\omega$ に依存する.その 結果,式(13),(14)を通して,それぞれの配置で $\mathbf{k}$  $\& \omega$ が互いに非直線的になる.ある $\omega$ の領域での  $\omega \& \mathbf{k}$ の関係がこのようにして決まる.これを 分散関係(dispersion relation)という.

単軸結晶中を伝播する直線偏光の光は電気 モードと磁気モードに分けられる[26].電気モー ドはEが恒等的に0ではないc方向成分をもつ光 であり,磁気モードはHが恒等的に0ではないc方向成分をもつ光を指す.主光学配置では pac, saa, そして pcaが電気モード,残りの sac, paa, そして sca が磁気モードである.結晶光学で取 り扱う媒質はほとんどの場合非磁性であり,本稿 で扱うサファイアも非磁性物質なので,以下の考 察では $\hat{\mu}$ は単位テンソルとしよう.

### 3.2 非磁性結晶中の光波と光線の関係

非磁性物質の結晶光学では複屈折との関連 で,上述の電気モードの光を異常光線 (extraordinary ray)と呼び,磁気モードの光を常光 線 (ordinary ray)と呼ぶ.常光線の *sac*, *sca*, *paa* 配置では*k* がどの方向でも*E*は*c*軸に垂直である から,式(7a),(7b)より,*k*,*E*, *H* が直交右手系 をつくることが明らかである.このとき

$$n = \sqrt{\mathcal{E}_{\perp}} \tag{15}$$

である.また異常光線でも, saa 配置では E は k

の方向にかかわらず常に *c* 軸に平行に向いて *H*, *k* と共に直交右手系をつくるから,

$$n = \sqrt{\varepsilon_{\parallel}} \tag{16}$$

である.これらの配置では <S> も k と平行になり,光線は光波と同じ方向に進む.

一方,異常光線の pac と pca 配置では H は結晶の(ac)面に垂直で  $\mathbf{k}$  と E はどちらも (ac) 面内にある. pac 配置で $\varepsilon_z = \varepsilon_{\parallel}$ ,  $\varepsilon_x = \varepsilon_{\perp}$ , そして pca 配置で $\varepsilon_z = \varepsilon_{\perp}$ ,  $\varepsilon_x = \varepsilon_{\parallel}$ である.  $\varepsilon_{\perp} \neq \varepsilon_{\parallel}$ である から,どちらの配置でも $\varepsilon_x \neq \varepsilon_z$ である.そこで ベクトル n の x, z 方向成分をそれぞれ n<sub>x</sub>, n<sub>z</sub> と書 けば,式(14)より

$$\frac{n_x^2}{\varepsilon_z} + \frac{n_z^2}{\varepsilon_x} = 1$$
(17a)

という,フレネルの関係式が求まる.周波数を一 定値にとったときに点 $(n_x, n_z)$ が画く軌跡を等周 波数屈折率曲線と呼び,

$$f(\boldsymbol{n}) = \frac{n_x^2}{\varepsilon_z} + \frac{n_z^2}{\varepsilon_x} - 1 = 0$$
(17b)

の曲線は,  $\mathcal{E}_x$ ,  $\mathcal{E}_z$ の値の正負に応じて楕円または 双曲線になる.これより, 異常光のnは屈折角に よって変わり, つまりは入射角によって変ること になる.

pac と pca 配置で k と E の間の角度に注 目すると,式(7b)より,k と直交するのは電気誘 導 D であり,E は k と直交しない.つまり,こ れら二つの配置では E, H および k はもはや直交 系を形成しない.E, H と直交するのは <S >である から,k と <S >は平行とならない.異常光のk の 屈折角が $\theta_t$ のとき <S >が向く角度を図 3 の $\theta'_t$  と すれば, $D = \hat{\epsilon} \varepsilon_0 E$  であることより, $\theta'_t$  は

$$\tan \theta_{t}' = \frac{\varepsilon_{x}}{\varepsilon_{z}} \tan \theta_{t}$$
(18)

で与えられることが見出される[付録 A3].誘電能 の異方性によって光線の進路に偏り,つまり,偏 向(deflection)が起こる.このように,異常光の 光線の進む方向がそれ自身の光波の進む方向と 異なることが異方性結晶の特徴の一つであり,多 様な屈折現象をもたらす要因となる.

自然界の波動は通常,いろいろな周波数の 波の重ね合わせになっている.重ね合わされた波 の周波数帯域幅が中心周波数よりも十分小さく, その帯域の範囲で分散曲線  $\omega(k)$  がよい直線性を もつとき,個々の波の位相速度が違っていても拡 散することなく,一塊りの波となって進む[27,28]. これを波群(wave group)または波束(wave packet) といい,光の場合それらの波群の流れが光線であ る.波群が進む速度は中心周波数での

$$\boldsymbol{w} = \operatorname{grad}_{\boldsymbol{k}} \boldsymbol{\omega}(\boldsymbol{k}) \tag{19}$$

で与えられ,これを群速度(group velocity)という. 結晶光学では光線速度といい,等周波数屈折率曲 線 $f(\mathbf{n}) = 0$ の法線 grad<sub>n</sub> $f(\mathbf{n})$ の方向を向く.p偏 光配置では,式(14)の分散関係より,

$$\boldsymbol{w} = \left(\frac{\boldsymbol{k}_x}{\varepsilon_z} + \frac{\boldsymbol{k}_z}{\varepsilon_x}\right) \left\{\frac{\omega}{c_0^2} - \frac{k_x^2}{2} \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{\varepsilon_z}\right) - \frac{k_z^2}{2} \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{\varepsilon_x}\right)\right\}^{-1}$$
(20)

となる.式(18)を参照すれば,wの方向が<S>の 方向と一致することが確認できる.式(20)の両辺 について k との内積をとって整理すると,速度比

$$\frac{c_0}{w} = s \tag{21}$$

について

$$s = \left[1 - \left(\frac{\omega}{2}\right) \left\{n_x^2 \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{\varepsilon_z}\right) + n_z^2 \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{\varepsilon_x}\right)\right\}\right]$$
$$\times n \cos(\theta_t' - \theta_t)$$
(22)

という表式が得られる.nの定義にならって

$$\mathbf{s} = s(\frac{\mathbf{w}}{w}) \tag{23}$$

は光線屈折率ベクトルまたはエネルギー屈折率 ベクトルと呼ばれる[29].ただし,文献[29]でボル ンとウォルフは式(22)の中の微分項を考えていな い.結晶光学では $\varepsilon_x$ ,  $\varepsilon_z$ を $\omega$ に依存しない定数と 想定して,しばしば微分項が除外されるが,後で 述べるように $\varepsilon_x$ ,  $\varepsilon_z$ が分散をもっていれば微分 項がゼロではないので,実際のsはnよりも強い  $\omega$ 依存性を示すことになる.

次節では平滑な結晶表面に任意の入射角で 斜入射した光が結晶中に進入するとき,どのよう に屈折するかを調べよう.

## 3.3 常光線と異常光線の屈折特性

-正屈折,負屈折,カウンターポジション-

結晶に接した透明で等方的な媒質の屈折率 を式(2)のときと同じく $n_i$ と書いて $n_i > 0$ とし,入 射角についても図3に描いた角度を $\theta_i > 0$ としよ う.また,結晶の屈折率nに符号をもたせ,n > 0で $\theta_t > 0$ ,n < 0 で $\theta_t < 0$ とする屈折角の取り方 と整合させるために,ここでは $\theta_t \ge \theta_t'$ の範囲を  $-90^\circ$ から+90°までとしよう.

そうすると, $k_x$ が保存されるので, $n_x$ が

$$n_{\rm r} = n_{\rm i} \sin \theta_{\rm i} \tag{24}$$

という正値で規定される .まず ,常光線および saa 配置の異常光線では , 3.2 で述べたように , n は入 射角によらずそれぞれ , $\sqrt{\varepsilon_{\perp}}$ ,  $\sqrt{\varepsilon_{\parallel}}$  に等しいから , 屈折光の  $n_z$ は常光線で

$$n_z = \sqrt{\varepsilon_\perp - n_i^2 \sin^2 \theta_i}$$
(25)

であり, saa 配置の異常光線で

$$n_z = \sqrt{\varepsilon_{\parallel} - n_{\rm i}^2 \sin^2 \theta_{\rm i}}$$
(26)

である .明らかに , $\mathcal{E}_{\perp}$  または $\mathcal{E}_{\parallel}$  が正値で $n_i^2 \sin^2 \theta_i$ より大きければ正屈折となるが , それよりも小さ いと  $n_z$ が虚数となるので ,光は結晶中に進入して 行けずにすべて反射される . この現象は , 水の中 やガラスの中を伝わる光が外に向けて表面に斜 入射したときに起る内部全反射(total internal reflection)と物理的には同じであるが ,ここでは光 は物質の外部から入射しているので ,本稿では以 後これを STR (<u>Snell's Total Reflection</u>) と呼ぶこ とにする .また , $\mathcal{E}_{\perp}$  または $\mathcal{E}_{\parallel}$  が負のときは入射角 に関わらず  $n_z$  が虚数となって金属型の全反射[付 録 A4]を起こす .

上でみたように,常光線と saa 配置の異常 光線では, n<sub>z</sub> は実数なら常に正の値をもつ.しか し pac および pca 配置での異常光線については, 式(17)からは n<sub>z</sub> が実数のとき,その値の正負は分 からない.正負を知るためにはマックスウェル方 程式に立ち返る必要がある.そこで,pac,pca 配置では H が y 方向を向き, E が(xz)面内にある ことを考慮して結晶表面の入射位置で式(7a)を y 成分で表し,式(7b)を x および z 成分に分解して 整理した上で E, H に共通の指数関数項を消去す ると,互いに独立な二つの関係式

$$n_{z}\overline{E}_{x} = c_{0}\mu_{0}\left(1 - \frac{n_{i}^{2}\sin^{2}\theta_{i}}{\varepsilon_{z}}\right)\overline{H}_{y}, \qquad (27)$$

$$n_{z}\overline{H}_{y} = c_{0}\varepsilon_{x}\varepsilon_{0}\overline{E}_{x}$$
(28)

が得られる[付録 A5].ここで,屈折光があるなら <u>
</u> *E* と <del>II</del> は実ベクトルであり,このとき,式(11) よりその入射位置で

$$\langle S_z \rangle = \frac{1}{2} \overline{E}_x \overline{H}_y$$
 (29)

であることに目を向けよう .< $S_z$ >>0 であるには,  $\overline{E}_x$ と $\overline{H}_y$ は同符号でなければならない.したがっ て,式(27),(28)より, $n_z$ は一義的に

$$n_z = \sqrt{1 - \frac{n_i^2 \sin^2 \theta_i}{\varepsilon_z}} \sqrt{\varepsilon_x}$$
(30)

と求められる .  $n_z$ の正負は $1 - n_i^2 \sin^2 \theta_i / \varepsilon_z$  と  $\varepsilon_x$ の符号の組み合わせにより決まることが分か る . 光が結晶中に進入して伝播することができる のは

$$(1 - \frac{n_i^2 \sin^2 \theta_i}{\varepsilon_z})\varepsilon_x > 0$$
(31)

のときである.つまり,  $1 - n_i^2 \sin^2 \theta_i / \varepsilon_z \& \varepsilon_x$  が 共に正のときだけでなく, 共に負のときも光が結 晶中に進入して伝播することができる.後者の場 合 $n_z < 0$ であるから,ベクトルn は結晶の外側を 向いているので, 屈折した光波は結晶の表面に向 って進む.これは2章で述べた,  $\varepsilon < 0$ ,  $\mu < 0$ の メタマテリアルにおいて起きる光波の負屈折と 丁度対応しており,自然の結晶では誘電関数の異 方性がこのような負屈折光波の伝播を可能にさ せる.

以上の結果より,単軸異方性結晶における pac および pca 配置での光の屈折特性を次のよう に区分することができる.

$$n = \sqrt{n_i^2 \sin^2 \theta_i + (1 - \frac{n_i^2 \sin^2 \theta_i}{\varepsilon_z})} \varepsilon_x \qquad (32)$$

に等しい.もしも  $\varepsilon_z > n_i^2 \sin^2 \theta_i$ ならば光線も正の 方向に屈曲する.しかし $\varepsilon_z < 0$ ならば,式(18)よ リ, $\theta'_t < 0$ となり,光線は後方に屈曲するように 偏向する.このとき, $k \ge \langle S \rangle$ の二つのベクト ルはz軸から見て互いに逆回りに傾くことになる ので,カウンターポジション(counterposition) と呼 ばれる[30].カウンターポジションの特徴は斜め 入射ならばどの入射角でも起こることである.そ のため,全角度負屈折(all-angle negative refraction) と呼ばれることがある[31]. (b)  $1 - n_i^2 \sin^2 \theta_i / \varepsilon_z \& \varepsilon_x$ の正負が異るとき  $n_z$ が虚数となるので,入射光は結晶中に進入して 行けず,すべて反射される.この全反射には常光 線の場合と同様にSTR型と金属型があり, $\varepsilon_x \& \varepsilon_z$ のどちらもが正であっても, $\varepsilon_z < n_i^2 \sin^2 \theta_i$ な ら STR が起こる.一方, $\varepsilon_x < 0$ ならば, $\varepsilon_z < 0$ のときだけでなく, $\varepsilon_z > n_i^2 \sin^2 \theta_i$ のときも金属型 の全反射となる.

(c)  $1 - n_i^2 \sin^2 \theta_i / \varepsilon_z \ \varepsilon_x$ が共に負,すなわち  $\varepsilon_x < 0 \ \tau \ 0 < \varepsilon_z < n_i^2 \sin^2 \theta_i$ のとき  $n_z < 0 \ \varepsilon_x$ 、が負で

$$n = -\sqrt{n_i^2 \sin^2 \theta_i + (1 - \frac{n_i^2 \sin^2 \theta_i}{\varepsilon_z})\varepsilon_x} \quad (33)$$

に等しい.ここで興味深いのは, $\mathcal{E}_x \geq \mathcal{E}_z$ がそれぞれ,金属型とSTR型の全反射条件を同時にみたすときに,負屈折光波が伝播できるようになることである.さらにこのとき,式(18)より $\theta'_t > 0$ なので,メタマテリアルでの負屈折の場合と異なって,光線は正の方向に偏向する.

区分(b)の場合, $n_z$ は虚数であるが, $n_x$ は式 (24)で示したように,外部媒体と入射角のみで決 まる実数 $n_i \sin \theta_i$ に等しい.一般に,ある光波の 屈折率ベクトルnまたは波数ベクトルkを二つの 直交した方向に分解したとき,一つの方向成分が 実数でもう一つの方向の成分が虚数または複素 数であるとき,この光波をエバネッセント波 (evanescent wave)という[32].平面波の定義式(3a), (3b)より容易に分かるように,n, kが実数の方向 には波動は伝播して行くが,虚数または複素数と なる方向には距離と共に減衰する.スネルの全反 射がその一例であり,光の電磁場は表面から一定 深さにまでしか浸透できない.この浸透している 電磁場をエバネッセント場または近接場 (near-field) という.エバネッセント波では振幅の 等しい平面が位相が同一の平面と一致しない.こ のような性質の波動は一般に不均一波 (inhomogeneous wave) と呼ばれ [33, 34], いろい ろな波動現象で起こることが知られている.

## 3.4 異方的な異常分散があるとき

1 つの固有角周波数 ω<sub>T</sub> をもって何らかの 光学遷移が共鳴的に起こるとき,誘電関数 ε は よい近似で

$$\varepsilon = \varepsilon_{\infty} + \frac{(\omega_L^2 - \omega_T^2)\varepsilon_{\infty}}{\omega_T^2 - \omega^2}$$
(34)

と表される.ここで  $\varepsilon_{\infty}$  はこの共鳴以外の光学応 答による誘電率へ寄与であり, $\omega_L$  はこの共鳴を 起こす分極波の縦波固有角周波数である.一般に  $\omega_T < \omega_L$ である.このような誘電率の変化は異常分 散と呼ばれ,共鳴領域の外側では  $\varepsilon > 0$  である が, $\omega_T$ から $\omega_L$ の間の $\omega$ で  $\varepsilon < 0$  となる.

図4はこの異常分散で主軸の違いを添字 1, 2 で区別して, $\omega_T$ , $\omega_L$  に単軸異方性があると想 定したときの誘電関数の模式的な曲線である.前 節での考察により, $\varepsilon_x$  と  $\varepsilon_z$  の値が異符号のと きにカウンターポジションあるいは負屈折とい う特異な屈折が起こることが明らかになった.図 4の場合,領域 $\omega_{T1} < \omega < \omega_{T2} < \omega_{L1} < \omega < \omega_{L2}$ が それに該当する.ただし前者の領域では $\varepsilon_1 < \varepsilon_2$ がそれぞれ負と正に発散的に増大するために,ど ちらが z 方向の光学配置になっても  $1-\sin^2\theta_i/\varepsilon_z$ の値がほとんど変化しないので,屈折特性は実際 上目立って変化しない.現実的で多様な屈折現象 が起こるのは $\varepsilon_1 < \varepsilon_2$ が異なる周波数で 0 を横切 って緩やかに変化する,後者の領域である.

誘電関数に強い分散があると ω vs.k の分 散関係に大きな変化が生じることになる.図5は 誘電率が上記のε1 で与えられるものと仮定した ときの分散関係である.  $\omega_T \geq \omega_L$ の間の $\omega$ で実数 の k が存在しないためにギャップが発生し,その 上下で分散曲線が大きく変化している.このよう な状態は一般に光が媒体中の分極性をもった素 励起と結合して一体化したときに見られ,ポラリ



図 4 式(34)による,異方的な異常分散があ るときの誘電関数のモデル曲線.



図 5 誘電関数が図 4 の $\varepsilon$ l で与えられると仮定 したときの光の分散関係 . 点線(a), (b), (c)は屈 折率がそれぞれ, 1 (真空中の光),  $\sqrt{\varepsilon_{\infty}}$  および  $(\omega_L / \omega_T) \sqrt{\varepsilon_{\infty}}$  に等しい定数のときの分散関係 を示す.

トンと総称される.

## 4. サファイア結晶の場合

4.1 赤外活性格子振動による異常分散の異方性

式(34)のタイプの誘電関数の異常分散が生じ る典型的な例はイオン性結合をもつ固体結晶の 中で赤外光によって格子振動の波動であるフォ ノン (phonon, 音子)が励起されるときである. GaN 系の発光ダイオードやレーザーダイオード の基板としてよく用いられるサファイアα-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> はイオン性の強い結合から成る固体の一つであ り,αコランダム構造[35]をもつ.ここではサフ ァイアを例にとって格子振動による赤外屈折特 性を具体的に考察しよう.

表 1. サファイアの赤外活性モードの格子振動

規約表現	モード	波数 (cm <sup>-1</sup> )	ダンピング 定数(cm <sup>-1</sup> )
$\mathbf{A}_{2u}^{1}$	$\mathrm{TO}^{1}_{\parallel}$	398.0	5.7
	$LO_{\parallel}^{1}$	511.0	1.5
$\mathbf{A}^2_{2u}$	TO <sup>2</sup> <sub>∥</sub>	583.0	2.5
	$LO_{\parallel}^{2}$	879.4	25
$E^1_u$	$\mathrm{TO}^{1}_{\perp}$	384.6	4.8
	$\mathrm{LO}^1_\perp$	387.7	4.8
$E_u^2$	$\mathrm{TO}^2_\perp$	439.3	4.8
	$\mathrm{LO}^2_\perp$	481.2	1.8
$E_{u}^{3}$	$\mathrm{TO}^3_\perp$	569.5	4.5
	$\mathrm{LO}^3_\perp$	629.2	6.5
$E_{u}^{4}$	$\mathrm{TO}^4_\perp$	633.5	5.2
	$\mathrm{LO}^4_\perp$	908.5	18

α コランダム構造は三方晶系に属し,したが って単軸異方性をもつ.基本単位胞は Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を 2 分子分含み,点群 D<sub>3d</sub>に属する.赤外光に応答す るフォノンは基本単位胞全体で電気分極を生じ る長波長の極性波であり,A<sub>2u</sub>のものが2つと E<sub>u</sub> のものが4つある.これらの記号は点群の規約表 現であり,長波長極限での原子変位の対称性を表 している.A<sub>2</sub>uは原子変位が結晶の*c*-軸に平行な 振動を指し,E<sub>u</sub>は垂直な振動を指す.前者に2つ, 後者に4つの分肢があるのは,対称性が同じでも イオン種やサイトの違いのために原子変位のパ ターンに自由度が残るためである.表1にそれら のフォノンの周波数とダンピング定数を掲げる. 周波数の上での相互の位置関係を図6に示す.図 中長方形で描いた領域はそれぞれのフォノンの TO (Transverse Optical: 横波光学)モードから LO (Longitudinal Optical: 縦波光学)モードまでの範囲 を示している.サファイアでは軽い原子が強く結 合しているために周波数が広い範囲に分布し,し たがって異方性も著しいという特徴がある.



図 6 サファイアにおける 2 つの A<sub>2u</sub> モードと 4 つの E<sub>u</sub> モードの TO-LO 帯域 .1 から 6 までの番 号をつけた青色の部分はどちらか一方のモード のみが占める周波数領域を示している .

なお,図6では横軸の∞を角周波数自体では なく,cm<sup>-1</sup>を単位とした1/λ₀で表している.これ は角周波数に正比例した桁数の小さい数値とな って実用に便利なので,光学周波数としてよく代 用される.特に赤外領域の研究で広く用いられる. この量は単位距離当たりの波動の繰り返し頻度 を表すので,慣習的にこの量も波数と呼ばれてい る.本稿で周波数または波数というときはこの 1/λ₀を指すものとする.

図 6 に示された波数領域で E//c,  $E \perp c$  の偏

光に対する誘電関数はよい近似で

$$\varepsilon_{\parallel(\perp)} = \varepsilon_{\infty\parallel(\perp)} \prod_{j} \frac{\omega_{jL}^2 - \omega^2 - i\gamma_{jL}\omega}{\omega_{jT}^2 - \omega^2 - i\gamma_{jT}\omega}$$
(35)

で与えられることが知られている.ここで *j* はそ れぞれの偏光の方向と同じ方向に分極をもつ基 準モードを指す番号であり, *E*//*c* で *j* = 1–2 が 2 つの A<sub>2u</sub> モードを, そして *E*⊥*c* で *j* = 1–4 が 4 つ の E<sub>u</sub> モードを指す また $\gamma$  はそれぞれのモードの TO および LO 振動のダンピング定数である .この 誘電関数でもダンピングがなければ式(34)と同じ く,  $\omega \rightarrow \omega_{jT}$  で $\varepsilon_{||(\perp)}$  ±∞となり,  $\omega \rightarrow \omega_{jL}$  で $\varepsilon_{||(\perp)}$ →0 であることに変わりない.ダンピングは誘電 関数を複素数にして $\omega \rightarrow \omega_{jT}$  での発散を抑止する とともに,  $\varepsilon_{||(\perp)} = 0$ の位置を $\omega_{jT}$ および $\omega_{jL}$ からわ ずかにずらせる働きをする.

式(35)に用いられるパラメータはすべて主 光学配置での反射スペクトルの測定より求める ことができ,阪大の三石ら[36]と米国ベル電話研 究所のバーカー[37]により独立に行われた初期の 実験以来,これまでにすでに多くの研究が報告さ れている.それらのうち垂直入射の研究としては 文献[38–41]がよく知られている.また最近筆者ら は c 面と a 面について斜入射反射を測定し, s, p 偏光の比較解析を行った[15,42].表1はその研究 で得られたデータである.

加えて,710 cm<sup>-1</sup> から 810 cm<sup>-1</sup> の間でごく弱 い多音子遷移が *E*//*c* で活性となることが見出さ れている[42].しかし本稿の主題である屈折特性 には影響しないので,4.4 で触れる反射スペクト ルに関する以外,問題とならない.

上に引用したこれまでの実験研究はすべて 室温の大気中で行われており,本稿でも同様に室 温大気中のサファイア結晶の屈折特性を取り扱う.当該の赤外周波数域では大気の屈折率はほと んど1に等しいので, n<sub>i</sub>=1とする.

## 4.2 ダンピングがないときの屈折特性

表1より分かるように,ダンピング定数は固 有周波数の $\omega_{jT}$ や $\omega_{jL}$ よりもはるかに小さい.そこ で以下の考察ではまず,すべてのモードについて  $\gamma=0$ と置き, $\varepsilon_{||}$ , $\varepsilon_{\perp}$ を実数とみなして3章の結果 を適用し,サファイアにおけるカウンターポジシ ョンと負屈折の基本的な振る舞いを概観してお こう.

主光学配置では  $\varepsilon_{||}$  と  $\varepsilon_{\perp}$  が  $\varepsilon_x$  と  $\varepsilon_z$  のい づれかを与える.これらの値が異符号のときにカ ウンターポジションまたは負屈折のどちらかが 起こることが3章で明らかにされた.図6に青色 で示した,1から6までの番号の領域がそのよう な波数域に該当するが,3.4 で述べたように,顕 著な現象が期待されるのは領域3と6である.そ こで,ここではそれらの領域での pac 配置におけ る屈折に目を向けよう.この配置では  $\varepsilon_x = \varepsilon_{\perp}$ ,  $\varepsilon_z = \varepsilon_{||}$ である.

### 4.2 (a) 領域3でのカウンターポジション

領域 3 では  $\varepsilon_{\perp} > 0$ ,  $\varepsilon_{\parallel} < 0$  であるが,領域 の直下では $\varepsilon_{\perp}$ ,  $\varepsilon_{\parallel}$ のどちらも負であるから金属 型の全反射がおこる.図7は pac 配置でこの状況 が $\theta_i$  および $\omega$ とともにどのように変化するかを, 横軸を $\theta_i$ ,縦軸を $\omega$ とする,( $\theta_i$ , $\omega$ )の2次元面 で表したダイアグラムである. $\theta_i = 0$ の垂直入射 では E は c 軸に垂直に偏光していて, $\varepsilon_{\perp}$ が正とな る, $E_u^2$ 振動の $LO_{\perp}^2$ より上の波数では透明である. これに対して $\theta_i \neq 0$ では c 軸に平行な E の成分が あり, $A_{2u}^1$ 振動のために $LO_{\parallel}^1$ の波数に達するまで  $\varepsilon_{\parallel}$ が負である.しかし,このとき光線がc軸によ って反射されるかのように屈折偏向し,光波のカ ウンターポジションとなることによって光波と 光線が結晶中を進んでいくことが可能となる.  $LO_{\parallel}^{1}$ の波数を越えると $\varepsilon_{\parallel}$ が正値に戻るの でカウンターポジションは解消されることにな るが, $\varepsilon_{\parallel} = \sin^{2}\theta_{i}$ のポラリトン状態 $S_{\parallel}^{1}$ に達するま では光は STR の全反射を受け,結晶中に進入でき なくなる.結晶が再び透明になり,通常の屈折に なるのは波数が $S_{\parallel}^{1}$ を越えてからである. $S_{\parallel}^{1}$ は入 射角の増大と共に高周波数側にシフトしていく ので STR の領域が拡がっていく.見方を変えれば, スペクトル上の不透明な領域に一つの窓が開く ように見えてくる.このようなカウンターポジシ



図7周波数領域3の周囲における pac 配置 での屈折特性の  $(\theta_i, \omega)$  ダイアグラム.

ョンの現象は結晶光学の歴史の中でこれまで永 く気づかれることがなかった.

透明な物体に見られる重要な光学現象の一 つにブリュースター無反射がある.これはある特 定の入射角で直線偏光の光が無反射となる現象 である.実際には誘電体における*p* 偏光の無反射 がよく知られているが,稿末の付録 A6 に述べる ように,理論的には *ĉ* が単位テンソルの非誘電性 磁性体で,磁気モードの*s* 偏向配置, *sac* および sca,において無反射が起こり得る.一般に,反 射光は屈折光によって物体内に誘導された交番 電気または磁気双極子からの,再放射光に他なら ない.電磁気学でよく知られているように,光は 交番双極子から軸対称的に放射されるが,双極子 の軸方向には放射されない.したがって,その方 向に光が反射されることはない.これをブリュー スターの法則といい[43],そのときの入射角をブ リュースター角という.誘電体の場合,結晶内分 極密度をPと書くと,DおよびEとの間に

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{D} - \boldsymbol{\varepsilon}_0 \boldsymbol{E} \tag{36}$$

という関係があるので,ブリュースター角は*p*偏 光の電気モードの主光学配置で

$$\frac{\varepsilon_x - 1}{\varepsilon_z - 1} \varepsilon_z = \tan^2 \theta_{\rm B} \tag{37}$$

を満たす角度 $\theta_{\rm B}$ として決まる[44, 付録 A6]. 図 7 で BNR (Brewster's <u>Null Reflection</u>)と記した緑 色の破線はこのようなブリュースター角の位置 の動きを示している. *pac* 配置で入射角を十分小 さくしたとき,つまり, $\theta_{\rm B} \ll 1$  ラジアンのとき は, $\varepsilon_{\perp} \approx 1$ または $\varepsilon_{\parallel} \approx 0$ のときに無反射となる.そ のため,領域3では図7のように, ${\rm LO}_{\perp}^2$ の直上と  ${\rm LO}_{\parallel}^{\rm I}$ の直下の波数で無反射が起こることになる.

主光学配置でのp 偏光の光線反射率は $\varepsilon_x$ ,  $\varepsilon_z$ の値の正負と虚実に関わりなく

$$R_{p} = \left| \frac{\sqrt{\varepsilon_{z} \varepsilon_{x}} \cos \theta_{i} - \sqrt{\varepsilon_{z} - \sin^{2} \theta_{i}}}{\sqrt{\varepsilon_{z} \varepsilon_{x}} \cos \theta_{i} + \sqrt{\varepsilon_{z} - \sin^{2} \theta_{i}}} \right|^{2}$$
(38)

で与えられる[42,45,付録 A7].上に述べたカウン ターポジションの様子を検証するために,ダンピ ングがないとしていくつかの入射角で*pac*配置で の反射スペクトル *R(ω*)を計算した結果が図 8 に 示されている.まず,垂直入射ではLO<sup>2</sup> の直上 の $\mathcal{E}_{\perp}$ =1となる周波数で,あたかも結晶が存在しないかのように見えることで無反射が起こる.入射光を傾けていくと無反射はBNRに移行し,ブリュースター則に従って,徐々に高周波数側にシフトしていく.一方, $LO_{\parallel}^{l}$ の直下のBNRはc軸方向のE成分があることによって起るので,垂直入射では起らず,入射光を垂直から傾けると出現



図8 周波数領域3の周囲における pac 配置で の反射スペクトルの入射角の違いによる変化 B はブリュースター無反射の位置を示す.

する.入射角を増していくと STR の周波数幅が 拡がっていき,それにつれて領域全体での光の透 過量が急速に増していく.

領域3でこのようなカウンターポジションが 起る様子を確認するために,等周波数屈折率曲線 に目を向けよう.一例として,ブリュースター角  $\theta_B$ が20°となる二つの周波数のうち,低い方の 483.8 cm<sup>-1</sup>を選んだときに式(17)より求められる 等周波数屈折率曲線が図9に示されている.図中 の青線がそれであり,原点から見た角度を入射ま たは屈折角として,その角度での動径が屈折率の 絶対値を与える.

図9では,図2,図3に示した波動と光線の

描像と対応するよう,上側に真空の等周波数屈折 率曲線を描き,下側にサファイアでの曲線を描い ている.真空の等周波数屈折率曲線は半径1の球



**図9** pac 配置において入射角 20°で BNR が起こ る周波数(483.8 cm<sup>-1</sup>)での真空とサファイアの等 周波数屈折率曲線.矢印は入射角 20°での入射 光と屈折光の n および s ベクトルを示す.肩付 添字(i),(t)はそれぞれ入射光と屈折光であるこ とを表す.分数値 1/93 は屈折光の s ベクトルの 縮小度である.

の外周円であり,サファイアでの曲線はz軸を回 転軸とする二葉回転双曲面を,y=0の平面で切断 したときの切り口が画く双曲線である.

図9にはまた,20°の入射角での屈折率ベク トルnの外に光線屈折率ベクトルsも示している. 入射光と屈折光でnの大きさと向きが共に同一 に近いのはBNRが $\mathcal{E}_{\perp} \cong 1$ の条件で起こっている ためである.屈折光でsが等周波数屈折率曲線の 法線の方向を向き,nに対してカウンターポジシ ョンとなっていることが確認される.ただしこの 図ではsの大きさを3.2で述べたボルンとウォル フの値 $n\cos(\theta_{i}'-\theta_{i})$ にして描いている.しかしこ の周波数では光と $E_u^2$ 音子が結合したポラリトン が $LO_1^2$ の直上にあるために,図5より予見できる ように,群速度が位相速度よりもはるかに遅くな っており,sは著しく大きくなる.式(22)により求 めた実際のsの大きさはボルンとウォルフの値の 93 倍にもなっている.

## 4.2 (b) 領域6での負屈折

領域 6 では  $\varepsilon_{\parallel} > 0$  であるが周波数が  $LO_{\perp}^4$  よ りも低いために $\varepsilon_{\perp} < 0$  となるので *pac* 配置で負 屈折が生じる.その様子を( $\theta_i$ , $\omega$ )の2次元面で 表したダイアグラムを図 10 に示す.垂直入射で は  $LO_{\perp}^4$  までの周波数区間で金属的な全反射にな るが,**3.3** の区分(c)で述べたように,斜入射では まず  $LO_{\parallel}^2$ からポラリトン  $S_{\parallel}^2$ までの区間で全反射 が破れて負屈折が起る.入射角が増していき, $S_{\parallel}^2$ 



図 10 周波数領域 6 の周囲における pac 配置での 屈折特性の  $(\theta_i, \omega)$  ダイアグラム.

が $LO_{\perp}^4$ を越えると $LO_{\perp}^4$ が負屈折区間の上限になり, STR が生じるのは $LO_{\perp}^4$ から $S_{\parallel}^2$ までの区間に限定される.つまり,金属型とSTR 型の全

反射条件が同時にみたされたときに負屈折が起 こっている.このとき BNR は小角斜入射では, 図のように, $\epsilon_{\parallel} \approx 0$ となる $S_{\parallel}^2$ の直下の負屈折区域 で起こり,入射角が増すと $S_{\parallel}^2$ よりも高周波数側の, 正屈折域に移る. $\epsilon_{\perp} \approx 1$ で起こるもう一つの BNR は 1050 cm<sup>-1</sup>を越える周波数位置となる.

図 11 に入射角を 0°, 20° および 40° としたと きの反射スペクトルを示す. 垂直入射のときは LO<sup>4</sup> まで全反射であるが斜入射によって負屈折 区域が生じ,その区域では透明となって反射率が



図11 周波数領域6の周囲における pac 配置で の反射スペクトルの入射角の違いによる変化. Bはプリュースター無反射の位置を示す.

減少する様子が明瞭に示されている.特に, $\theta_i = 20^{\circ}$ では区域内で BNR による無反射が起こっている.さらに, $S_{\parallel}^2$ が $LO_{\perp}^4$ を越える,40°の入射角では, $LO_{\parallel}^2$ から $LO_{\perp}^4$ までのスペクトル域で負屈折の光が結晶内に進入できるために反射率が1より低下している.その結果,およそ 30 cm<sup>-1</sup>の広さで透明なスペクトルの窓が生じている.

入射角が 20°で負屈折区域内に起る BNR の 周波数 889 cm<sup>-1</sup>における等周波数屈折率曲線と**n**, *s* ベクトルを図 12 に示す .サファイアでの屈折率 曲線は,領域 3 のときとは異なり,*z* 軸の周りの



**図 12** pac 配置において入射角 20°で BNR が起 こる周波数(889 cm<sup>-1</sup>)での真空とサファイアの 等周波数屈折率曲線.矢印は入射角 20°での入 射光と屈折光の n および s ベクトルを示す.肩 付添字(i),(t)はそれぞれ入射光と屈折光である ことを表す.分数値 1/59 は屈折光の s ベクトル の縮小度である.

一葉回転双曲面を,y=0の平面で切断したときの 切り口が画く双曲線である.ここでは光波が負の 屈折を示すが,光線は正方向に偏向する様子が明 確に現れている.なお,この図でもsはボルンと ウォルフの値のsで描いているが,周波数が $LO_{\parallel}^{2}$ の直上であるため,図中に記入したように,実際 の大きさは図の 59 倍である.

## 4.2 (c) 領域 6 の外側での正屈折

これまで述べてきたカウンターポジション および負屈折特性との比較のために,領域6の外 側での*pac*配置における正屈折の等周波数屈折率 曲線とn, sベクトルを図13に示す.ここではブ リュースター角が40°となる波数934.1 cm<sup>-1</sup> を 選んでいる.この波数では $\varepsilon_{\parallel}$ ,  $\varepsilon_{\perp}$ のどちらも正 値であるため,サファイアの等周波数屈折率曲線 は楕円となっている.ただ, $\mathcal{E}_{\parallel}$ , $\mathcal{E}_{\perp}$ の値がどちら も1より小さいため,原点からの動径は屈折角に 依らず1より小さくなっている.図10から分か るように,この波数では入射角がおよそ45°以上 になるとSTR が起こる.それ以下の入射角で常 に正屈折となるが,垂直入射でないかぎり,結晶 内の屈折光の $n \ge s$ が平行になることはない.



**図 13** pac 配置において入射角 40°で BNR が起 こる周波数 934.1 cm<sup>-1</sup> での真空とサファイアの 等周波数屈折率曲線.矢印は入射角 40°での入 射光と屈折光の n および s ベクトルを示す.肩 付添字(i),(t)はそれぞれ入射光と屈折光である ことを表す.分数値 1/10 は屈折光の s ベクトル の縮小度である.

この図でも屈折光の*s*はボルンとウォルフの 大きさに描いている.この周波数ではポラリトン 効果はかなり弱くなるが,それでもなお,実際に はボルンとウォルフの*s*の10倍の大きさがある.

## 4.3 実際のサファイア結晶中の光波と光線

実際の結晶の高周波電磁誘導では入力した 高周波エネルギーの散逸があるために必ずダン ピングが生じ,誘電関数が複素数になる.誘電関 数に虚数部があると,台北工科大のジェンらも指 摘しているように[46],異常光の屈折と偏向の形 態がさらに多様になる.そこでここでは,実際の ダンピングを考慮に入れて,サファイアでの光波 と光線の屈折・偏向特性を定量的に検討しよう.

4.3 (a) 光波の屈折

 $\varepsilon_x$  と $\varepsilon_z$  が複素数のとき,式(30)で与えられる $n_z$ も複素数となるので,

$$n_z = n_z' + i n_z''$$
 (39)

と書こう.このとき,実の屈折率の正負は $n_{z'}$ の 符号で決まるので, $n_{x} = \sin \theta_{i}$ を考慮して

$$n = n_{z}' \sqrt{1 + \frac{\sin^2 \theta_i}{n_{z}'^2}}$$
(40)

と表すことができる.また,実の屈折角は

$$\theta_{t} = \arctan(\frac{\sin \theta_{i}}{n_{z}'}) \tag{41}$$

で与えられる.

結晶表面において,反射光の寄与分も併せ て *E<sub>x</sub>* と *H<sub>y</sub>* が結晶の外側と内側で連続であると いう電磁気学上の条件の下で式(7a),(7b)を整理す ると, *pac* および *pca* 配置での屈折光について

$$\boldsymbol{E} = \frac{H_{y}^{(i)}(0)\boldsymbol{\phi}}{c_{0}\varepsilon_{0}} \left[ \frac{n_{z}}{\varepsilon_{x}} \boldsymbol{e}_{x} - \frac{\sin\theta_{i}}{\varepsilon_{z}} \boldsymbol{e}_{z} \right] \exp\{-n_{z}^{\prime\prime\prime} k_{0} z + i \left[ k_{0} (\sin\theta_{i} x + n_{z}^{\prime} z) - \omega t \right] \}, \qquad (42a)$$

$$H = H_{y}^{(i)}(0)\phi e_{y} \exp\{-n_{z}'' k_{0} z + i[k_{0}(\sin\theta_{i} x + n_{z}' z) - \omega t]\}$$
(42b)

が導かれる.ここで $H_y^{(i)}(0)$ は入射光の磁場の強 さの結晶表面上の原点での値であり, $\phi$ はこの位 置における光の磁場 $H_y(0)$ の透過/入射比を表し,

$$\phi = \frac{2\varepsilon_x \cos\theta_i}{n_z + \varepsilon_x \cos\theta_i} \tag{43}$$

である[付録 A8].また, *e<sub>x</sub>*, *e<sub>y</sub>* および *e<sub>z</sub>*は,それ ぞれ, *x*, *y* および *z* 方向の単位ベクトルを表す. 虚数成分 *n<sub>z</sub>*"が屈折光をエバネッセント波にし, 屈折光は *x* 方向には表面に沿って波動として伝播 して行くが,深さ *z* 方向に振幅は

$$\delta = \frac{1}{n_z'' k_0} \tag{44}$$

の表皮深さで指数関数で減衰する.次節でも述べるが,同様に光線の強さ<S>もz方向に指数関数で減衰し,その減衰係数が

$$\alpha = 2n_z''k_0 \tag{45}$$

で与えられることが明らかである.

図 14(a)と 14(b)に,それぞれ,ダンピング を無視したときと実際のダンピングを考慮した ときの,領域3におけるpac配置での $n_{z}' と n_{z}''$ の スペクトルを示す.ただし図 14(b)では $n_{z}''$ に替 えて減衰係数 $\alpha$ のスペクトルを描いている.図 14(a)と 14(b)では入射角を,それぞれ,20°と 25° という異なる値にしているが,結果の上で基本的 な違いはなく,どちらにも $\mathrm{LO}_{\perp}^{2}$ と $\mathrm{LO}_{\parallel}^{1}$ の間でカ ウンターポジションの正屈折となる様子が明瞭 に現れている.ダンピングがごく小さいとき, $n_{z}'$ と $n_{z}''$ は周波数的に互いにほとんど重なること なく, $\mathrm{LO}_{\perp}^{2}$ と $\mathrm{LO}_{\parallel}^{1}$ の近傍で鋭く不連続的に変化 するが,ダンピングが強まるとその鋭さが抑制さ れ, $n_{z}' と n_{z}''$ のスペクトルは周波数上互いに重 畳して連続的に変化することが分かる.

図 15(a)と 15(b)に図 14 と同様に、それぞれ、 ダンピングを無視したときと実際のダンピング を考慮したときの、領域 6 における *pac* 配置での *nz'* と *nz''* のスペクトルを示す.ただし図 15(a) と 15(b)では入射角をそれぞれ 20°と 25°という異



図 14 周波数領域3の近傍でのpac 配置における (a)入射角 20°でのダンピングのないときの $n_{z'}$  と $n_{z''}$  および(b)入射角 25°での実際のダンピングが ある結晶の $n_{z'}$  と $\alpha$ のスペクトル.

なる値にし,また,図 15(b)では  $n_{z''}$  に替えて減 衰係数 $\alpha$ のスペクトルを描いている点も図 14 と 同じである.ダンピングがないときは  $n_{z'} < 0$  とな る負屈折のスペクトル域が, $n_{z'} = 0$  となる全反射 域に挟まれる様子が図 15(a)よりよく分かる.しか し,実際には $\mathrm{LO}_{\parallel}^{2}$  と $\mathrm{LO}_{\perp}^{4}$  がそれぞれ,25 cm<sup>-1</sup> お よび 18 cm<sup>-1</sup> という比較的大きなダンピング定数 をもつために,図 15(b)のように, $n_{z'}$  と $n_{z''}$  (およ び $\alpha$ )の変化が強く抑制されて,滑らかで連続的 なスペクトルになる.その結果,完全な全反射域 がなくなる.特に,負屈折域が $\mathrm{LO}_{\parallel}^{2}$ より下の周波 数にまで拡がるのは興味深い.

### 4.3 (b) 光線の偏向

式(42a),(42b)より結晶内の<S>を求めると,



図 15 周波数領域 6 の近傍での pac 配置における (a)入射角 20°でのダンピングのないときの  $n_{z'}$  と  $n_{z''}$  および(b)入射角 25°での実際のダンピングが ある結晶の  $n_{z'}$  と $\alpha$  のスペクトル.

$$<\boldsymbol{S}>=\frac{|H_{y}^{(i)}(0)|^{2}|\boldsymbol{\phi}|^{2}}{2c_{0}\varepsilon_{0}}\operatorname{Re}\left[\frac{\sin\theta_{i}}{\varepsilon_{z}}\boldsymbol{e}_{x}+\frac{n_{z}}{\varepsilon_{x}}\boldsymbol{e}_{z}\right]$$
$$\times\exp(-2n_{z}^{\prime\prime\prime}k_{0}z) \tag{46}$$

となる.前節で述べた光線の減衰はこの式中の指数減衰項によって起る.ここで,入射光を平行光線としてその強さを $I_i$ ,光束の断面積を $A_i$ とし, また,結晶中に進入した光線の表面直下での強さとその光束の断面積をそれぞれ $I_t$ , $A_t$ としよう. 電磁気学によれば,真空中での光の時間平均エネルギー密度は $\mu_0 | H_y^{(i)} |^2 / 2$ であり,これを $U_i$ として, $I_i = A_i U_i c_0$ であるから,式(46)より,



図 16 pac 配置におけるサファイアの反射スペクトル.矢印は図 8 と図 11 で指摘された, 領域 3 と領域 6 でのダンピングがないときに予想されるブリュースター無反射の位置を示 す.

$$I_{t} = A_{t} | \langle \boldsymbol{S}(0) \rangle |$$
  
=  $I_{i} \left( \frac{A_{t}}{A_{i}} \right) | \boldsymbol{\phi} |^{2} \left| \operatorname{Re} \left[ \frac{\sin \theta_{i}}{\varepsilon_{z}} \right] \boldsymbol{e}_{x} + \operatorname{Re} \left[ \frac{n_{z}}{\varepsilon_{x}} \right] \boldsymbol{e}_{z} \right|$   
(47)

であることが分かる .<S(0)> はz = 0 での結晶内 の <S>を表す .平行光線が結晶表面で折れ曲がる とき ,断面積は $A_t / A_i = \cos \theta_t' / \cos \theta_i$ の割合で変 化する . したがって , サファイア結晶の中への光 線の進入率を

$$F = \frac{I_{t}}{I_{i}}$$
$$= \frac{\cos \theta_{t}'}{\cos \theta_{i}} |\phi|^{2} \left| \operatorname{Re}\left[\frac{\sin \theta_{i}}{\varepsilon_{z}}\right] \boldsymbol{e}_{x} + \operatorname{Re}\left[\frac{n_{z}}{\varepsilon_{x}}\right] \boldsymbol{e}_{z} \right|$$
(48)

により知ることができる.進入するエネルギー流 は *x* 方向と *z* 方向の成分から成っており,それら は

$$F_{x} = \frac{\cos \theta_{t}'}{\cos \theta_{i}} |\phi|^{2} \operatorname{Re}\left[\frac{\sin \theta_{i}}{\varepsilon_{z}}\right],$$

$$F_{z} = \frac{\cos \theta_{t}'}{\cos \theta_{i}} |\phi|^{2} \operatorname{Re}\left[\frac{n_{z}}{\varepsilon_{x}}\right]$$
(49)

# である.これより,光線の偏向角が

$$\tan \theta_{t}' = \frac{\operatorname{Re}\left[\frac{\sin \theta_{i}}{\varepsilon_{z}}\right]}{\operatorname{Re}\left[\frac{n_{z}}{\varepsilon_{x}}\right]}$$
(50)

により決まることが分かる.入射光のうち,結晶 中に進入しなかった光線は反射されるので,反射 率 R との間に

$$F + R = 1 \tag{51}$$

という関係がある.したがって, *R* が実験で求ま れば, 1-*R* により *F* も実験値として求まる.

領域 1 から領域 6 までの全周波数域での pac 配置における入射角 25°の反射スペクトルを 図 16 に青色の実線で示す.表1に掲げたフォノ ンの実験データと,4.1の末尾で述べた,*E*//c 偏 光での多音子遷移の寄与を合せて式(35)に適用し て求められた R を描いたものである.710 cm<sup>-1</sup> か ら 810 cm<sup>-1</sup>にわたって見られるいくつかのごく弱 い凹みがこの多音子遷移によるものである.図に はまた,垂直入射のときのスペクトルが赤色の破 線で示されている 4.2 (a)および4.2 (b)で論じた, 領域 3 でのカウンターポジションと領域 6 での負 屈折の効果が青赤二つのスペクトルの間の差異 として実際の結晶でも明瞭に現れている.

図 17 と 18 にそれぞれ,領域3 と領域6 を

拡大し, pac 配置における $\theta_i = 25^\circ$ でのF,  $F_x$  お よび  $F_z$ を示す.このようにポインティングベク トルを調べると光線の進入度と結晶内で光線が 進む向きを同時に知ることができ,次に述べるよ うに,いろいろな事実が見えてくる.

まず領域 3 では,カウンターポジションに よる光線の後方偏向が図 17 における大きな負値 の $F_x$ によって示されている. $|F_x/F_z|$ の値は領域 3 の下限周波数である $LO_{\perp}^2$ から上限周波数である  $LO_{\parallel}^1$ の直下にかけて急速に増大している.これよ り,偏向角  $\theta_t'$ は $LO_{\perp}^2$ の周波数での -4.5°から, 周波数が増すとともに増していき,510 cm<sup>-1</sup> で -74°にまで達することが分かる.

領域 6 では,ダンピングがなければ負屈折 の下限周波数であった  $LO_{\parallel}^{2}$ から  $F_{x}$ が正値で立ち 上がり,上限であった  $S_{\parallel}^{2}$ の近くで 50 %を越える 値にまで成長することが図 18 より分かる.さら に特筆すべきことは,ダンピングがあるために,  $LO_{\parallel}^{2}$ より低い周波数で光線が後方偏向を起こし



図 17 サファイア結晶の周波数領域 3 の近 傍での入射角 25°での pac 配置における  $F, F_x$ および  $F_z$ のスペクトル.



**図 18** サファイア結晶の周波数領域 6 の近 傍での入射角 25°での *pac* 配置における *F*, *F*<sub>x</sub> および *F*,のスペクトル.

て負の x の向きに進入していくことである.その ために,  $LO_{\parallel}^{2}$ の周波数で F はおよそ 60 %という 値をもち,さらに周波数が低下しても,ダンピン グのないときのように直ちにゼロとはならず, $F_{x}$ の絶対値が最大となる 872 cm<sup>-1</sup>で,F はまだ 44 % という大きな値を保つ.このとき偏向角  $\theta'_{i}$  は – 59°となっている.図 15(b)の  $n'_{z}$ より,同じ周波 数で光波の屈折角 $\theta_{t}$  は –71°であることが求ま るから,ここでは図 2(b)に示したメタマテリアル の場合と同様の,真の負屈折に近い状況が実現し ている.

このときの具体的な光波と光線の進入の様 子が図 19 に描かれている.光線と光波は結晶表 面から,それぞれ,およそ1および2ミクロン程 度の深さにまでしか到達しない.光の入る深さが このように浅いのは,872 cm<sup>-1</sup>の光が元来エバネ ッセント波であることから来ている.図 15(a) に



図 19 サファイア結晶に周波数 872 cm<sup>-1</sup>の光 が *pac* 配置で 25°の入射角で入射したときの 屈折光の光波と光線.矢印はそれぞれの向き を表し,矢の長さは 1/e に減衰する距離であ る.

示されているように,ダンピングのないとき,この周波数で $n_z$ は純虚数で $n_z'' \approx 1$ である.このと

き(全反射であるから F=0 であるが,何らかの理 由でわずかに結晶中に入ったとしても)エネルギ ー流の進入深さはやはり1ミクロンの程度と見積 もられる.それに比べて図 19 に示された,ダン ピングがあるときの光線の進入深さが目立って 浅くなってはいない.したがってこの場合,ダン ピングがあるために相当量の比率の光線が結晶 中に進入して散逸するが,光線の進入深さ自体は 本来のエバネッセント場の浸透深さでほぼ決ま っていると言える.

それに対して,領域3のカウンターポジションでは領域の大部分で本来透明であり,反射率も低いために,光線の浸透率がおよそ80%以上という高い値をもつ.また,ダンピングが加わっても図14(b)に示されているように,減衰係数が1×10<sup>3</sup> cm<sup>-1</sup>以下であることも注目に値しよう.

## 5. 関連する国内外の研究

光デバイスに用いられる材料は化合物半導 体をはじめとして,多くが単軸性の結晶構造をも っている. それらの中, SiC や GaN, ZnO などで はサファイアの周波数領域 6 の場合と同様に, LO<sub>1</sub>, LO<sub>1</sub>がどちらも TO<sub>1</sub>, TO<sub>1</sub>よりも高い周波数 をもち,かつ,LO」がLO」よりも相対的に高い周 波数をもっている.米国ネブラスカ大のティワル ドらは 4H- および 6H-SiC の自由電子吸収やフォ ノンの異方性を調べるために結晶の c 面について 高入射角で分光エリプソメトリーの実験研究を 行った[47]. その過程で図 11 に示したものと同様 のスペクトルの窓の存在をp偏光反射に見出して いる (文献[47]の Fig. 6).当時はまだ,異方性結晶 における光の屈折の特異性について世界で共通 の認識がなかったためにこのスペクトルの窓が 負屈折によるものであることに気づかなかった が,彼らは誘電率の異方性に基づいて,図10と 基本的に同じ( $\theta_i$ ,  $\omega$ )ダイアグラムを導出した(文 献[47]の Fig. 8). 一方,筆者らは GaN/サファイア 堆積膜と GaN バルク結晶, ZnO/サファイア堆積 膜と ZnO バルク結晶,そしてサファイアのバルク 結晶などで主光学配置の小角斜入射赤外反射ス ペクトルを系統的に測定し,単軸結晶特有の *s*, *p* 偏光依存性の解析を行った[42, 48-51]. これらよ り得られた知見が,本稿の元になった研究[15]に つながった.

誘電的異方性の大きい Hg<sub>2</sub>X<sub>2</sub> (X = Cl, Br, I) などの結晶が負屈折の実現に有望であることが 理論的に指摘された[10]ことを契機に, 2005年頃 から,計算機シミュレーションによって結晶内の 光線を可視化する研究も盛んに行われ始めた .3.3 で述べた区分によれば,それらで取り扱われる対 象はほとんどがカウンターポジションの光線で ある.ブラジル連邦大のドゥメロウら[9]は硫酸グ リシン(TGS)結晶の格子振動による赤外誘電率の 異方的な異常分散に着目して光線の後方偏向の 様子を調べた.続けて世界各地でSiC/SiO2 ヘテロ 積層膜[11]や水晶結晶膜[13]などについて計算機 シミュレーションにより同様の検討が行われ,サ ファイアについても一件報告された[52].さらに, 上述のドゥメロウのグループは実用性の観点か ら平板レンズとしての分解能についての検討を 水晶などにおいて行っている[14].

最後に,用語について少し触れておこう. 等方媒質については,負の屈折を示すものはしば しば「負屈折率媒質」と呼ばれるが,ベセラゴに ならって「左手系」と呼ばれることも多い.また, 2章で述べたように,そのような媒質では光波の 進行方向が光線とちょうど反平行であることか ら,「後進波系」と呼ばれることがある.さらに, ベセラゴ自身[53]はその光波を「負位相速度波」 と呼ぶことを推奨した.

一方,異方性結晶の場合,光波と光線の進 む方向が互いに異なる場合があることに起因し て,用語の不統一があった.初期の理論では等方 媒体での負屈折における後進波との対応から,結 晶表面に平行な成分 <*S<sub>x</sub>*> が負値となった光線 を横(lateral)後進波[7]あるいは負屈折光[8,54]と呼 んだ.また,エリツィアンが最初に気づいた[6], 結晶内部から表面に向って逆行して来るように 屈折した光波も後進波に分類された[8,54].そのた め,続いて行われた数値シミュレーション研究の 多くで,カウンターポジションの光線を負屈折と みなしており,さらに,3.3 の区分(a)で述べたよ うに,全角度負屈折と呼ばれることもある.

しかし,屈折を表すスネル則はあくまで光 波について成り立ち,光線は対象とならない.-般に光線や電子線が進路から逸れる現象が偏向 と呼ばれることから,この場合も光線の折れ曲が りはむしろ偏向と見なすべきであろうとの指摘 が生まれた[32].ただ,光線の伝播特性が光波と 一体であることも事実である.このことを踏まえ てペンシルバニア州立大のラクタキアらは n<sub>z</sub> が 負値,つまり光波の k<sub>z</sub>が負値となる,エリツィア ンの屈折を負屈折とし,異常光の光線の折れ曲が りを「屈折(による)偏向」と呼んだ[46].本稿もこ の用語法に準拠し,カウンターポジションでの光 線の進路を後方偏向と表した.

# 6. 結び

負屈折現象を中心にして,異方的な光学結 晶における赤外屈折特性についての最近の波動 光学的研究について述べてきた.近年メタマテリ アルに多くの関心が集まっているが,自然の結晶 でも誘電率テンソルの主要素の一つが他の二つ と異なる符号の値をもつ場合には,斜入射した異 常光線にこれまで知られていなかった特異な屈 折特性が現れることが分かった.このとき現れる 負屈折や後進波,光線の後方偏向,そしてカウン ターポジションという概念は,これまでの波動光 学や結晶光学について書かれたどの教科書でも 触れられたことがない.多くの自然の結晶物質で 光の屈折特性に正と負の二面性があるにもかか わらず,われわれは今世紀になるまで,その片面 しか知らなかったと言える.

ここで述べた研究の元は FT/IR 装置を用い た光デバイス用材料の電子格子物性についての 基礎的な実験研究であった.赤外屈折特性を立ち 入って調べる動機となったのは,スネル型の全反 射と金属型の全反射の物理的条件が重複すると きにそれらの結晶が異常光線に対して透明にな るという,これまで経験したことのない不思議な 実験結果に出会ったことであった.そこで基礎的 な波動光学といくつかの法則に基づいて考察を 進めて行き,多くの新しい知見を得ることができ たが,その要因の一つは,ポインティングベクト ルを定量的に評価することにより,結晶中に入っ て進んでいく光線の方向を明らかにすることが できたことである.ポインティングベクトルがこ のように主要な視点の一つとして固体の分光研 究に取り入れられたことは,おそらくこれまでに ほとんどなかったと思われる.文献[15]には反射 率 R から求めたポインティングベクトルの実験 値も示している.文献リストに記した URI により, 最終原稿に直接アクセスできるので,関心のある 読者はそちらも参照されたい.

自然の結晶における異常屈折について,今 はまだ,存在が実証されたばかりである.本稿の 標題の末尾を「序論」としたのはそのためであり, 波動光学の様々な課題について今後さらに繰り 広げられる展開に期待がふくらむ.応用に目を向 けた研究も世界各地で進められているので,近い 将来どのような革新的な技術が生まれるか,大き な関心がもたれる.

### 謝辞

ここに述べた知見の主要部分は筆者が熊本

大学に奉職中に意を注いだ研究を継続発展させ て得られたものである.熊本大学での研究は大学 院生の津川晃一,熊谷雄児,日元武史,佐伯和也 の諸君の熱意と努力に負うところが大きい.また, 反保衆志,横井裕之,田端淑矩の諸兄からは共同 研究などを通して多くの助力をいただいた.心よ り感謝して,ここに記す.

## 付録

### A1. 等方性媒質の屈折率

式(7b),(7b)のマックスウェル方程式に基づき,ポインティングベクトルを取り入れて定式化することにより,式(10)は次のようにして求めることができる.

*k* を便宜上 *z* 軸に平行とする.ただし,正 負の向きは任意である.等方性媒質ではこのとき,
 *E*, *H* はどちらも(*xy*)面内にある.そこで式(7a)の *y* 成分と式(7b)の *x* 成分を組み合わせ,また,式(7a) の *x* 成分と式(7b)の *y* 成分を組み合わせた上で共 通の指数関数項を消去すると,次の二組の連立式

$$\begin{cases} nk_0\overline{E}_x = \omega\mu\mu_0\overline{H}_y \\ nk_0\overline{H}_y = \omega\varepsilon\varepsilon_0\overline{E}_x \end{cases}$$
(A1.1)

$$\begin{cases} -nk_0\overline{E}_y = \omega\mu\mu_0\overline{H}_x \\ -nk_0\overline{H}_x = \omega\varepsilon\varepsilon_0\overline{E}_y \end{cases}$$
(A1.2)

が求まる.平面波の光が伝播するには, $\overline{E}$ , $\overline{H}$ は どちらも実ベクトルで, $\overline{E}_x \ge \overline{H}_y$ および $\overline{E}_y \ge \overline{H}_x$ がそれぞれ,(A1.1)および(A1.2)の連立式をみたさ なければならない.いま,光線が +z の方向に進 んでいるとしよう.そうすると,Sをポインティ ングベクトルとして, $\langle S_z \rangle > 0$ である.このとき,  $\langle S \rangle$ の定義式(11)より,

$$\langle S_z \rangle = \frac{1}{2} \left( \overline{E}_x \overline{H}_y - \overline{E}_y \overline{H}_x \right)$$
 (A1.3)

であるから,  $\langle S_z \rangle > 0$ であるためには $\overline{E}_x \geq \overline{H}_y$ は同符号で,かつ $\overline{E}_y \geq \overline{H}_x$ は異符号でなければならない.したがって,式(A1.1), (A1.2)の何れにおいても

(i)  $\mu > 0$  で $\varepsilon > 0$  のときn > 0,

(ii)  $\mu < 0$  で $\varepsilon < 0$  のときはn < 0

でなければならない .(i)および(ii)の場合それぞれ,  $nk_0 > 0$ および < 0であるから,ベクトル k, E, Hはそれぞれ右手系および左手系となっているこ とが容易に確かめられる.さらに,

(iii)  $\mu$ ,  $\varepsilon$ が異符号なら実数の n が存在しない ことも明らかである.本文の式(9)  $n^2 = \mu \varepsilon$ に対し てこれらの(i), (ii)および(iii)をみたす解として,

$$n = \sqrt{\mu} \sqrt{\varepsilon}$$

が一義的に求まる.これが本文の式(10)である.

## A2. 分散関係

まず *s* 偏光配置に目を向けると, *E* が *y* 成 分のみ持ち, *H* が(*zx*)面内にあるので,本文の式 (7a)より

$$-k_z E_y = \omega \mu_0 \mu_x H_x \tag{A2.1}$$

$$k_x E_v = \omega \mu_0 \mu_z H_z \tag{A2.2}$$

が得られ,本文の式(7b)より

$$H_z k_x - H_x k_z = \omega \varepsilon_0 \varepsilon_y E_y \qquad (A2.3)$$

が得られる.式(A2.1)の $H_x$ と式(A2.2)の $H_z$ を式 (A2.3)に代入し, $E_y$ を消去して整理すると

$$\frac{k_x^2}{\mu_z} + \frac{k_z^2}{\mu_x} = (\frac{\omega}{c_0})^2 \varepsilon$$

が求まる.ただし関係式  $\mu_0 \varepsilon_0 = \frac{1}{c_0^2}$ を用いた.こ れが本文の式(13)である.

次に *p* 偏光配置では *H* が *y* 成分のみ持ち, *E* が(*zx*)面内にあるので,本文の式(7a)より

$$k_z E_x - k_x E_z = \omega \mu_0 \mu_y H_y \qquad (A2.4)$$

が得られ,本文の式(7b)より

$$H_{v}k_{z} = \omega\varepsilon_{0}\varepsilon_{x}E_{x} \qquad (A2.5)$$

$$-H_{v}k_{x} = \omega\varepsilon_{0}\varepsilon_{z}E_{z} \qquad (A2.6)$$

が得られる.式(A2.5)の $E_x$ と式(A2.6)の $E_z$ を式 (A2.4)に代入し, $H_y$ を消去して整理すると

$$\frac{k_x^2}{\varepsilon_z} + \frac{k_z^2}{\varepsilon_x} = (\frac{\omega}{c_0})^2 \mu_y$$

が求まる.これが本文の式(14)である.

## A3. p 偏光の $\theta_t' \geq \theta_t$ の関係

 $m{D} = \hat{arepsilon} \mathcal{E}$  だから ,図 A.1 または本文の図 3 より ,

$$D_x^{(t)} = | \boldsymbol{D}^{(t)} | \cos \theta_t$$
  
=  $\varepsilon_x E_x^{(t)} = \varepsilon_x | \boldsymbol{E}^{(t)} | \cos \theta_t'$  (A3.1)

$$D_{z}^{(t)} = - | \boldsymbol{D}^{(t)} | \sin \theta_{t}$$
  
=  $-\varepsilon_{z} E_{z}^{(t)} = -\varepsilon_{z} | \boldsymbol{E}^{(t)} | \sin \theta_{t}'$  (A3.2)

である.したがって
$$\frac{-D_z^{(t)}}{D_z^{(t)}} = \tan \theta_t = \frac{\varepsilon_z}{\varepsilon_z} \tan \theta_t'$$
(A3.3)

である.これより

$$\tan \theta_{\rm t}' = \frac{\varepsilon_x}{\varepsilon_z} \tan \theta_{\rm t}$$

が求まる.これが本文の式(18)である.

### A4. 金属での全反射 -プラズマ反射-

金属は一般に高い電気伝導度を示す.それ は外部から電界が加わると金属内の高密度の自 由電子が電界に応答して動くからである.電界が 高周波の交流の場合,それらの電子はダンピング のある荷電粒子(プラズマ)として応答し,電界を 遮蔽するように作用する.異方性のない金属では このとき誘電率はよい近似で

$$\varepsilon = \varepsilon_{\infty} \left( 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \right)$$
(A4.1)

と表される.これをドゥルーデ・モデルという. ここで $\varepsilon_{\infty}$ は価電子など,自由電子以外の電子や原 子からの光学誘電応答への寄与を表し, $\gamma$ はダン ピング定数である.また, $\omega_p$ はプラズマ振動数で あり,一個の電子の有効質量をm,その電荷量を e,自由電子の密度をNとして

$$\omega_p^2 = \frac{Ne^2}{\varepsilon_\infty \varepsilon_0 m} \tag{A4.2}$$

で与えられる . *ω*, の値は物質によって大きく異 なるが,多くの金属で赤外から可視域または紫外 域にある.共通して言えることは, γよりも十分 高く,ω,よりも低い周波数の光に対して,εが負 のほぼ純実数の値となることである.このとき, 屈折率 n がほぼ純虚数となって強い反射を起こす. εが正値でもスネルの屈折則をみたさないとき STR が起こるのに対して、これは自由電荷によっ て光の電界が遮蔽されることによって起る. γ→0 で反射率→1 であるから基本的に全反射現象であ り,実際,金,銀,アルミニゥムなどは赤外から 可視域のほぼ全域にわたって高い反射率を示す. 詳細については, 例えば, 黒田規敬:「固体物性学 講義ノート」第8章,物質の光学特性(熊本大学 学術リポジトリ, http://hdl.handle.net/2298/8246) を参照のこと.

A5. 
$$p$$
 偏光での  $n_z \ge E_x$ ,  $H_y \ge 0$ 関係

式(A2.6)の *E*<sub>z</sub>を式(A2.4)に代入し,さらに両 辺から共通の指数関数を消去すると

$$k_{z}\overline{E}_{x} = (\omega\mu_{0}\mu_{y} - \frac{k_{x}^{2}}{\omega\varepsilon_{0}\varepsilon_{z}})\overline{H}_{y} \qquad (A5.1)$$

となる.ここで,本文の式(24)より $k_x = n_i \sin \theta_i$ でである. $k_z = n_z k_0$ ,  $k_0 = \frac{\omega}{c_0}$ , そして $\mu_0 \varepsilon_0 = \frac{1}{c_0^2}$ などの関係式を用いて式(A5.1)を整理すると

$$n_{z}\overline{E}_{x} = c_{0}\mu_{0}(\mu_{y} - \frac{n_{i}^{2}\sin^{2}\theta_{i}}{\varepsilon_{z}})\overline{H}_{y} \qquad (A5.2)$$

が得られる.また式(A2.5)より

$$n_{z}\overline{H}_{y} = c_{0}\varepsilon_{0}\varepsilon_{x}\overline{E}_{x}$$
(A5.3)

が求まる.これが本文の式(28)である.本文中で 述べたように, $\overline{E}_x$ と $\overline{H}_y$ が同符号であることを考 慮すると,式(A5.2),(A5.3)より直ちに

$$n_{z} = \sqrt{\mu_{y} - \frac{n_{i}^{2} \sin^{2} \theta_{i}}{\varepsilon_{z}}} \sqrt{\varepsilon_{x}}$$
(A5.4)

と求まる.非磁性体を考えて式(A5.4)で $\mu_y$  = 1 と したものが本文の式(30)である.

# A6. ブリュースター角

*pac と pca* 配置で屈折光によって結晶中に誘起 される電気双極子密度を *P* とすると,本文の式 (36)より

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{D} - \boldsymbol{\varepsilon}_0 \boldsymbol{E} \tag{A6.1}$$

だから,  $\boldsymbol{D} = \hat{\boldsymbol{\varepsilon}} \boldsymbol{\varepsilon}_0 \boldsymbol{E}$  であることを考慮すれば,

$$P_{x} = (\varepsilon_{x} - 1)\varepsilon_{0}E_{x} = \frac{\varepsilon_{x} - 1}{\varepsilon_{x}}D_{x}$$
(A6.2)

$$P_{z} = (\varepsilon_{z} - 1)\varepsilon_{0}E_{z} = \frac{\varepsilon_{z} - 1}{\varepsilon_{z}}D_{z} \quad .$$
 (A6.3)

である.ただし,簡単のために上付きの(t)は省略 した.これより,

$$\tan \theta_{\rm P} = \frac{-P_z}{P_x} = \frac{\varepsilon_z - 1}{\varepsilon_x - 1} \frac{\varepsilon_x}{\varepsilon_z} \frac{-D_z}{D_x}$$
$$= \frac{\varepsilon_z - 1}{\varepsilon_x - 1} \frac{\varepsilon_x}{\varepsilon_z} \tan \theta_{\rm t}$$
(A6.4)

である.非磁性体においてブリュースターの無反 射が起こるとき,図A1に示すように,

$$\tan \theta_{\rm P} = \tan(90^\circ - \theta_{\rm i}) = \frac{1}{\tan \theta_{\rm i}} \qquad (A6.5)$$

であるから,式(A6.4)と組み合わせると



**図**A1 ブリュースターの無反射が起こる ときの反射光と電気双極子密度 *P*<sup>(t)</sup>との関 係の模式図.ただし *D*<sup>(t)</sup>, *E*<sup>(t)</sup> は *P*<sup>(t)</sup>に対し て,式(A6.1)を満たすよう配慮して描かれ てはいない.

$$\tan \theta_{i} \tan \theta_{t} = \frac{\varepsilon_{x} - 1}{\varepsilon_{z} - 1} \frac{\varepsilon_{z}}{\varepsilon_{x}}$$
(A6.6)

となる .一方 ,非磁性体での *p* 偏光の光に対する , 本文の式(17a)のフレネルの関係式

$$\frac{\sin^2 \theta_t}{\varepsilon_z} + \frac{\cos^2 \theta_t}{\varepsilon_x} = \frac{1}{n^2}$$
(A6.7)

において

$$\tan \theta_{\rm t} = q \tag{A6.8}$$

と置くと,

$$n^{2} = \frac{\varepsilon_{z}\varepsilon_{x}(1+q^{2})}{\varepsilon_{z}+\varepsilon_{x}q^{2}}$$
(A6.9)

となる.さらに,

$$\tan \theta_{\rm i} = t \tag{A6.10}$$

と置けば,スネル則 $\sin \theta_i = n \sin \theta_i$ の両辺を二乗 することにより

$$\frac{t^2}{1+t^2} = \frac{n^2 q^2}{1+q^2}$$
(A6.11)

が得られる.この右辺に式(A6.9)の *n*<sup>2</sup>を代入して 書き変えると

$$q^{2} = \frac{\varepsilon_{z}}{\varepsilon_{x}} \frac{t^{2}}{\varepsilon_{z} + (\varepsilon_{z} - 1)t^{2}}$$
(A6.12)

が求まる.これによって  $\tan \theta_{t}$ が  $\tan \theta_{i}$ と関係づけられる.一方,ブリュースター則を表す式(A6.6)の両辺を二乗すれば

$$t^2 q^2 = \left(\frac{\varepsilon_x - 1}{\varepsilon_z - 1}\right)^2 \left(\frac{\varepsilon_z}{\varepsilon_x}\right)^2 \tag{A6.13}$$

となる.これに式(A6.12)の q<sup>2</sup> を代入して整理す ると

$$(t^2 - \frac{\varepsilon_x - 1}{\varepsilon_z - 1}\varepsilon_z)(t^2 + \frac{\varepsilon_x - 1}{\varepsilon_z - 1}\frac{\varepsilon_z}{\varepsilon_x}) = 0 \quad (A6.14)$$

となる. 左辺第1項より得られる解

$$t^{2} = \tan^{2} \theta_{i} = \frac{\varepsilon_{x} - 1}{\varepsilon_{z} - 1} \varepsilon_{z}$$
 (A6.15)

の $\theta_i$ が本文の式(38)のRを0にし,また,これ以 外に恒等的にRを0にする $\theta_i$ はない.したがって, この $\theta_i$ がプリュースター角 $\theta_B$ を与える.これが 本文の式(37)である.

他方,  $\hat{\varepsilon}$ が単位テンソルで $\hat{\mu}$ テンソルの要素のいくつかが1ではない磁性体でも,磁気モードの*s*偏向配置, *sac*および*sca*,において入射面に平行に磁気モーメントが誘起され,無反射が起こり得る.ブリュースター角を求めるには電気モードの取り扱いをそのまま拡張すればよく,したがって,式(A6.15)の $\varepsilon$ を $\mu$ に置き換えることにより

$$\tan^2 \theta_{\rm B} = \frac{\mu_x - 1}{\mu_z - 1} \mu_z$$
 (A6.16)

と与えられる.

2000 年以降,メタマテリアルとの関連で,  $\hat{\varepsilon}$ ,  $\hat{\mu}$ のどちらもが単位テンソルではない,磁性 誘電体についての研究が進んだ.この場合,光で 誘起された電気双極子と磁気双極子が共存して いる上に,それらは平行ではないので,ブリュー スター効果は起こらないのではないかと思われ たが,次のA7で求める光線反射率の表式(A7.10) および(A7.11)より,*s*,*p*偏光のどちらの場合もそ れぞれで,反射が消失する入射角が存在し得るこ とが分かる.これは電気双極子と磁気双極子の二 つの振動双極子から反射光として放射される電 磁場がこれらの入射角のときに丁度反平行とな って相互にキャンセルするためであることが理 論的に示された[55].原理的にこの無反射現象も ブリュースター効果と云える.

### A7. 主光学配置での光線の反射率

メタマテリアルにも適合するよう,ここでは  $\hat{\mu}$ ,  $\hat{\varepsilon}$  テンソルに制限を加えないこととし,本文 に沿って,まず p 偏光配置での光線の反射率を考 えよう.このとき D, E が zx 面内にあり,かつ H//y であることを考慮して,マックスウェル方 程式(7b)

$$H \times k = \omega \hat{\varepsilon} \varepsilon_0 E$$

に注目する.入射光について式(7b)の x-成分をとれば

$$H^{(i)}k_0\cos\theta_i = \omega\varepsilon_0 E^{(i)}\cos\theta_i$$

だから

$$H^{(i)} = c_0 \varepsilon_0 E^{(i)}$$
 (A7.1)

である.また,反射光について式(7b)の *x*-成分を とれば

 $-H^{(r)}k_0\cos\theta_i = -\omega\varepsilon_0E^{(r)}\cos\theta_i$ 

だから

$$H^{(\mathrm{r})} = c_0 \mathcal{E}_0 E^{(\mathrm{r})} \tag{A7.2}$$

$$H^{(t)}n_z k_0 = c_0 \varepsilon_x \varepsilon_0 E^{(t)} \cos \theta_t'$$

だから

$$H^{(t)} = c_0 \varepsilon_0 \frac{\varepsilon_x \cos \theta_t'}{n_z} E^{(t)} \qquad (A7.3)$$

となる.電磁気学によれば,E > Hの正接成分 すなわち $E_x > H_y$ はどちらも境界面の表裏で連続 である.式(A7.1), (A7.2)および(A7.3)より,光の 入射位置 *z* = *x* = 0 での *E<sub>x</sub>*の連続条件は

$$\cos\theta_{i}(\overline{H}^{(i)} - \overline{H}^{(r)}) = \frac{n_{z}}{\varepsilon_{x}}\overline{H}^{(t)} \qquad (A7.4)$$

となり, H<sub>v</sub> の連続条件は

$$\overline{H}^{(i)} + \overline{H}^{(r)} = \overline{H}^{(t)}$$
(A7.5)

となる.式(A7.5)の $\overline{H}^{(t)}$ を式(A7.4)に代入して整 理すると

$$\frac{\overline{H}^{(r)}}{\overline{H}^{(i)}} = \frac{\varepsilon_x \cos \theta_i - n_z}{\varepsilon_x \cos \theta_i + n_z}$$
(A7.6)

が得られる.ここで,結晶は大気中に置かれてい るとしているので  $n_i = 1$  である.したがって式 (A5.4)より

$$n_z = \sqrt{\varepsilon_x} \sqrt{\mu_y - \frac{\sin^2 \theta_i}{\varepsilon_z}}$$
(A7.7)

である.これを式(A7.6)に代入して右辺の分母と 分子を $\sqrt{\varepsilon_x}$ で除すと

$$\frac{\overline{H}^{(r)}}{\overline{H}^{(i)}} = \frac{\sqrt{\varepsilon_x}\cos\theta_i - \sqrt{\mu_y - \frac{\sin^2\theta_i}{\varepsilon_z}}}{\sqrt{\varepsilon_x}\cos\theta_i + \sqrt{\mu_y - \frac{\sin^2\theta_i}{\varepsilon_z}}} \quad (A7.8)$$

が得られる.また式(A7.1), (A7.2)より

$$\frac{\overline{H}^{(r)}}{\overline{H}^{(i)}} = \frac{\overline{E}^{(r)}}{\overline{E}^{(i)}}$$
(A7.9)

であるから,光線の反射率は

$$R_{p} = \frac{|\langle \mathbf{S}^{(\mathrm{r})} \rangle|}{|\langle \mathbf{S}^{(\mathrm{i})} \rangle|} = \frac{\overline{E}^{(\mathrm{r})}\overline{H}^{(\mathrm{r})*}}{\overline{E}^{(\mathrm{i})}\overline{H}^{(\mathrm{i})*}} = \frac{\overline{H}^{(\mathrm{r})}\overline{H}^{(\mathrm{r})*}}{\overline{H}^{(\mathrm{i})*}} = \left|\frac{\overline{H}^{(\mathrm{r})}}{\overline{H}^{(\mathrm{i})}}\right|^{2}$$
$$= \frac{\left|\frac{\sqrt{\varepsilon_{x}}\cos\theta_{\mathrm{i}}} - \sqrt{\mu_{y}} - \frac{\sin^{2}\theta_{\mathrm{i}}}{\varepsilon_{z}}}{\sqrt{\varepsilon_{x}}\cos\theta_{\mathrm{i}}} + \sqrt{\mu_{y}} - \frac{\sin^{2}\theta_{\mathrm{i}}}{\varepsilon_{z}}}\right|^{2}}{A(7.10)}$$

となる.ここで $\mu_y = 1$ とし,右辺の分母と分子に  $\sqrt{\varepsilon_z}$ を掛けたものが本文の式(38)である.導出の 過程より明らかなように,式(A7.10)は $\varepsilon_x$ ,  $\varepsilon_z$ およ び $\mu_y$ の値の正負と虚実に関わりなく成り立ち,ま た,式(38)も $\varepsilon_x$ ,  $\varepsilon_z$ の値の正負と虚実に関わりなく 成り立つ.

式(A7.10)は p 偏光配置の 2 つの電気モード 配置 pac, pca と 1 つの磁気モード配置 paa での 光線の反射率を与える.3.1 で導いた分散関係の 考察より明らかなように,磁気モードと電気モー ドは  $\varepsilon \ge \mu$ を互いに置き換えた関係になってい る.したがって,式(A7.10)の  $\varepsilon \ge \mu$ を置き換えた,

$$R_{s} = \left| \frac{\sqrt{\mu_{x}} \cos \theta_{i} - \sqrt{\varepsilon_{y} - \frac{\sin^{2} \theta_{i}}{\mu_{z}}}}{\sqrt{\mu_{x}} \cos \theta_{i} + \sqrt{\varepsilon_{y} - \frac{\sin^{2} \theta_{i}}{\mu_{z}}}} \right|^{2} \quad (A7.11)$$

が *s* 偏光配置における磁気モードの *sac*, *sca* と電 気モードの *saa* での光線の反射率を与える.ここ で,  $\mu_x = \mu_z = 1$  としたときの

$$R_{s} = \left| \frac{\cos \theta_{i} - \sqrt{\varepsilon_{y} - \sin^{2} \theta_{i}}}{\cos \theta_{i} + \sqrt{\varepsilon_{y} - \sin^{2} \theta_{i}}} \right|^{2}$$
(A7.12)

が通常の単軸非磁性体の s 偏光反射率である.

なお,式(A7.10)および(A7.11)より分かるように,等方的で $\mu = \varepsilon = -1$ のメタマテリアルでは  $R_s, R_p$ は入射角にかかわらず0となる.これがス ーパーレンズを作るための大きな要因である.

# A8. p 偏光配置での屈折光波

式(A7.4), (A7.5)から  $\overline{H}^{(r)}$ を消去して

$$\frac{H_y^{(t)}}{\overline{H}_y^{(i)}} = \frac{2\varepsilon_x \cos\theta_i}{n_z + \varepsilon_x \cos\theta_i}$$
(A8.1)

が得られる.ただし,考えているp偏光配置では H が常に入射面に垂直であることを示すために ここでは下付きでyを付けている.この式は境界 面の表裏での磁場強度の比であるから,結晶表面 の入射位置での光波の磁場振幅の透過/入射比に 等しい.この比を Øと表したのが本文の式(43)であ る.この Øを用いると,式(A7.3),式(18)および式 (24)より,結晶内の光波の E は

$$\boldsymbol{E}^{(t)} = \{ E_x^{(t)}(0)\boldsymbol{e}_x + E_z^{(t)}(0)\boldsymbol{e}_z \} e^{i\{k_0(\sin\theta_i x + n_z z) - \omega t\}}$$
$$= \frac{H_y^{(i)}(0)\phi}{c_0\varepsilon_0} (\frac{n_z}{\varepsilon_x}\boldsymbol{e}_x - \frac{\sin\theta_i}{\varepsilon_z}\boldsymbol{e}_z) e^{i\{k_0(\sin\theta_i x + n_z z) - \omega t\}}$$
(A8.2)

と求まる.また,Hは

$$\boldsymbol{H}^{(t)} = H_{\boldsymbol{y}}^{(i)}(0) \boldsymbol{\phi} \boldsymbol{e}_{\boldsymbol{y}} e^{i\{k_0(\sin\theta_i \boldsymbol{x} + n_z \boldsymbol{z}) - \omega t\}}$$
(A8.3)

と表される.ここで, $E_x^{(t)}(0)$ , $E_z^{(t)}(0)$ , $H_y^{(i)}(0)$ はそれぞれ,時刻t = 0での結晶表面の光の入射位置における $E_x^{(t)}$ , $E_z^{(t)}$ , $H_y^{(i)}$ の値とする.さらに $n_z$ を複素数で表すと,式(A8.2),(A8.3)はそれぞれ,本文の式(42a),(42b)となる.

## 文献

- R. A. Shelby, D. R. Smith, and S. Shultz: "Experimental verification of a negative index of refraction" Science 292 (2001) 77.
- [2] V. G. Veselago: "The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of  $\varepsilon$  and  $\mu$ " Sov. Phys. USP. **10** (1968) 509.
- [3] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart: "Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena" IEEE Trans. Microw. Theory Tech., 47 (1999) 2075.
- [4] D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, and S. Schultz: "Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity" Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 4184.
- [5] J. B. Pendry: "Negative refraction makes a perfect lens" Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 3966.
- [6] O. S. Eritsyan: "Optical properties of anisotropic crystals in which the dielectric permittivity tensor has components with different signs" Sov. Phys.

Crystallogr. 23 (1978) 255.

- [7] I. V. Lindell, S. A. Tretyakov, K. I. Nikoskinen, and S. Ilvonen: "BW media – media with negative parameters, capable of supporting backward waves" Microw. Opt. Technol. Lett. 31 (2001) 129.
- [8] P. A. Belov: "Backward waves and negative refraction in uniaxial dielectrics with negative dielectric permittivity along the anisotropy axis" Microw. Opt. Technol. Lett. 37 (2003) 259.
- [9] T. Dumelow, J. A. P. da Costa, and V. N. Freire: "Slab lenses from simple anisotropic media" Phys. Rev. B 72 (2005) 235115.
- [10] V. Dvorak and P. Kuzel: "Negative index of refraction in anisotropic nonmagnetic materials" Ferroelectrics **338** (2006) 195.
- [11] L. V. Alekseyev and E. Narimanov: "Slow light and 3D imaging with non-magnetic negative index systems" Opt. Express **14** (2006) 11184.
- [12] O. S. Eritsyan, A. A. Lalayan, O. M. Arakelyan, A. A. Papoyan, and R. B. Kostanyan: "Crystals with an open wave-vector surface: Peculiarities of reflection and possibilities of designing flat lenses" Crystallogr. Rep. 55 (2010) 938.
- [13] R. Rodrigues da Silva, R. Macêdo da Silva, T. Dumelow, J. A. P. da Costa, S. B. Honorato, and A. P. Ayala: "Using phonon resonances as a route to all-angle negative refraction in the far-infrared region: The case of crystal quartz" Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 163903.
- [14] R. Estevam da Silva, R. Macedo, T. Dumelow, J. A. P. da Costa, S. B. Honorato, and A. P. Ayala: "Far infrared slab lensing and subwavelength imaging in crystal quartz" Phys. Rev. B 86 (2012) 155152.
- [15] N. Kuroda, K. Tsugawa, and H. Yokoi: "Negative refraction of infrared waves and rays in sapphire  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>" J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 114706 ; 熊本大学学術リポジトリ http://hdl.handle.net/2298/28386.
- [16] S. A. Ramakrishna: "Physics of negative refractive index materials" Rep. Prog. Phys. 68 (2005) 449.
- [17] V. M. Shalaev: "Optical negative-index metamaterials" Nature Photonics **1** (2007) 41.
- [18] 石原照也監修:「メタマテリアルの技術と応 用」(シーエムシー出版, 2011年)
- [19] 納富雅也: 「フォトニック結晶と負の屈折 –特 異な分散が導くもの–」応用物理 74 巻 (2005) 173.
- [20] 田中拓男:「プラズモニック・メタマテリアル とその応用」 応用物理 75 巻 (2006) 1476.
- [21] 小林功佳:「グラフェンと負の屈折・スーパー レンズ -2 次元ディラック・フェルミオンの電子光学-」

表面科学 29 巻 (2008) 629.

- [22] 北野正雄:「メタマテリアルとは何か」応用物 理 78巻 (2009) 503.
- [23] 酒井 道:「プラズマとメタマテリアルとの出 会いによる新マテリアル」 J. Plasma Fusion Res. 88 (2012) 251.
- [24] 落合友四郎: 「透明マントは実現するか?」応 用物理 82 巻 (2013) 41.
- [25] 黒田規敬:「現代技術の物理学」(創想舎,2007年)4章4節 交流電気伝導;熊本大学学術リポジトリ http://hdl.handle.net/2298/10977.
- [26] R. A. Depine, M. E. Inchaussandague, and A. Lakhtakia: "Classification of dispersion equations for homogeneous dielectric-magnetic uniaxial materials" J. Opt. Soc. Am. A 23 (2006) 949.
- [27] 黒田規敬:「現代技術の物理学」(創想舎,2007年)5章10節位相速度と群速度;熊本大学学術リポジトリhttp://hdl.handle.net/2298/10978.
- [28] リチャード・ファインマン,ロバート・レイトン,マシュー・サンズ:「ファインマン物理学 II光 熱 波動」(富山小太郎訳,岩波書店,2003年) 23 章 4 節 局在する波連.
- [29] マックス・ボルン,エミル・ウォルフ:「光学の原理Ⅲ」(草川徹・横田英嗣訳,東海大学出版会,1995年)14章2節 非等方媒質内における単色平面波の構造.
- [30] A. Lakhtakia and M. W. McCall: "Counterposed phase velocity and energy-transport velocity vectors in a dielectric-magnetic uniaxial medium" Optik 115 (2004) 28.
- [31] H. Shin and S. Fan: "All-angle negative refraction for surface plasmon waves using a metal-dielectric-metal structure" Phys. Rev. Lett. 96 (2006) 073907.
- [32] V. A. Markel and J. C. Schotland: "On the sign of refraction in anisotropic non-magnetic media" J. Opt. 12 (2010) 015104.
- [33] L. P. Mosteller, Jr. and F. Wooten: "Optical properties and reflectance of uniaxial absorbing crystals" J. Opt. Soc. Am. 58 (1968) 511.
- [34]小西 良弘:「実用マイクロ波技術講座 -理論と 実際-第1巻」 (CQ 出版, 2007 年)1章 電波 と分布定数線路.
- [35] 桐山良一,桐山秀子:「構造無機化学 I」 (共 立全書 16,共立出版,1964年)
- [36] A. Mitsuishi, H. Yoshinaga, S. Fujita, and Y. Suemoto: "Vibrational spectra of ruby and haematite in the infrared region" Jpn. J. Appl. Phys. 1 (1962) 1.
- [37] A. S. Barker, Jr.: "Infrared lattice vibrations and dielectric dispersion in corundum" Phys. Rev. 132 (1963) 1474.
- [38] F. Gervais and B. Piriou: "Anharmonicity in

several-polar-mode crystals : adjusting phonon self-energy of LO and TO modes in  $Al_2O_3$  and  $TiO_2$  to fit infrared reflectivity" J. Phys. C: Solid State Phys. **7** (1974) 2374.

- [39] M. E. Thomas, S. K. Andersson, R. M. Sova, and R. I. Joseph: "Frequency and temperature dependence of the refractive index of sapphire" Infrared Phys. Technol. **39** (1998)235.
- [40] M. Schubert, T. E. Tiwald, and C. M. Herzinger: "Infrared dielectric anisotropy and phonon modes of sapphire" Phys. Rev. B 61 (2000) 8187.
- [41] G. Yu, N. L. Rowell and D. J. Lockwood: "Anisotropic infrared optical properties of GaN and sapphire" J. Vac. Sci. Technol. A 22 (2004) 1110.
- [42] Y. Kumagai, H. Yokoi, H. Tampo, Y. Tabata and N. Kuroda: "Infrared study of sapphire a-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> by small-angle oblique-incidence reflectometry" J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) 024709; 熊本大学学 術リポジトリ http://hdl.handle.net/2298/28381.
- [43] マックス・ボルン,エミル・ウォルフ:「光学の原理」」(草川徹・横田英嗣訳,東海大学出版会,1995年)1章5節平面波の反射と屈折.
- [44] J. Lekner: "Brewster angles in reflection by uniaxial crystals" J. Opt. Soc. Am. A 10 (1993) 2059.
- [45] P. Brüesch: "Phonons: Theory and experiments II" (Springer-Verlag, Berlin, 1986) Appendix B.4.
- [46] Y. J. Jen, A. Lakhtakia, C. W. Yu and C. T. Lin: "Negative refraction in a uniaxial absorbent dielectric material" Eur. J. Phys. **30** (2009) 1381.
- [47] T. E. Tiwald, J. A. Woolam, S. Zollner, J. Christiansen, R. B. Gregory, T. Wetteroth, S. R. Wilson, and A. R. Powell: "Carrier concentration and lattice absorption in bulk and epitaxial silicon carbide determined using infrared ellipsometry" Phys. Rev. B 60 (1999) 11464.
- [48] N. Kuroda, T. Kitayama, Y. Nishi, K. Saiki, H. Yokoi, J. Watanabe, M-W. Cho, T. Egawa, and H. Ishikawa: "Infrared study on graded lattice quality in thin GaN crystals grown on sapphire" Jpn. J. Appl. Phys. 45 (2006) 646.
- [49] 黒田規敬:「ヘテロ残留線反射と全反射減衰によるワイドギャップ半導体堆積薄膜の結晶品位評価」平成17~18年度科学研究費補助金(基盤研究(C)課題番号:17560024)研究成果報告書(2007年4月); 熊本大学学術リポジトリhttp://hdl.handle.net/2298/3441.
- [50] N. Kuroda and Y. Tabata: "Small-angle oblique-incidence infrared reflection in polar materials: I. model approach" J. Phys. Soc. Jpn 79 (2010) 024710; 熊本大学学術リポジトリ http://hdl.handle.net/2298/14430.

- [51] N. Kuroda, Y. Kumagai, T. Himoto, and H. Yokoi: "Small-angle oblique-incidence reflection in polar materials: II. experiment on ZnO" J. Phys. Soc. Jpn 79 (2010) 064712; 熊本大学学術 リポジトリ http://hdl.handle.net/2298/16191.
- [52] R. Wang, J. Sun, and J. Zhou: "Indefinite permittivity in uniaxial single crystal at infrared frequency" Appl. Phys. Lett. **97** (2010) 031912.
- [53] V. G. Veselago and E. E. Narimanov: "The left hand of brightness: past, present and future of negative index materials" Nature Mater. 5 (2006) 759.
- [54] L. I. Perez, M. T. Garea and R. M. Echarri: "Isotropic-uniaxial crystal interfaces: Negative refraction and backward wave phenomena" Opt. Commun. 254 (2005) 10.
- [55] C. Fu, Z. M. Zhang and P. N. First: "Brewster angle with a negative-index material" Appl. Opt. 44 (2005) 3716.

(2014年7月記)

<sup>†</sup> 著者 黒田 規敬 (Kuroda Noritaka)

<略歴>

- 1942 年 兵庫県生
- 1965年神戸大学理学部物理学科卒業
- 1967年東北大学大学院修士課程修了
- 1970 年 関西学院大学大学院博士課程単位取得退学 同 年 理学博士

1971年より東北大学金属材料研究所助手,同助教授,熊 本大学工学部教授を経て,同大学大学院教授.2008年定 年退職.この間米国パデュー大学客員シニア研究員 (1975-1977),東北大学客員教授(2000,2007),大阪大学招 聘教授(2005)などを兼務.

<専門分野>

固体物理学.特に,半導体関連材料の光物性.

### <主な著書>

- 1) Semiconductors and Semimetals Vol.54, *High Pressure in Semiconductor Physics* (分担執筆, Academic Press, 1998).
- 丸善実験物理学講座 12 巻「実験環境技術」(分担執筆, 丸善,2000).
- 3)「現代技術の物理学」(単著 創想舎 2007 第2刷 2012).
- 4) 実験物理科学シリーズ 5「強磁場の発生と応用」(分担 執筆,共立出版,2008).

<論文>

英文原著論文 140 余編,邦文著作 多数

うち一部のリプリントまたは最終原稿を熊本大学学術リ ポジトリ

http://reposit.lib.kumamoto-u.ac.jp/items-by-author?author=Kuroda%2C+Noritaka

に収録.