

# 金属誘電体メタマテリアルにおける非線形光学効果

大野誠吾<sup>A</sup>, 井田知章<sup>A</sup>, 黒澤裕之<sup>A</sup>, 南出泰亜<sup>B</sup>, 伊藤弘昌<sup>B</sup>, 石原照也<sup>A</sup>

東北大学大学院理学研究科物理学専攻<sup>A</sup>

理化学研究所基幹研究所<sup>B</sup>

## Nonlinear optical effects in metal-dielectric metamaterials

S. OHNO<sup>A</sup>, T. IDA<sup>A</sup>, H. KUROSAWA<sup>A</sup>, H. MINAMIDE<sup>B</sup>,

H. ITO<sup>B</sup>, and T. ISHIHARA<sup>A</sup>

Department of Science, Tohoku University<sup>A</sup>

ASI RIKEN<sup>B</sup>

Micro-fabrication structures made of metal and dielectric materials have potential to realize large polarization cause of their high mobility and high density of free carrier in the metallic part of the metamaterials. In this work, we propose a structure for nonlinear optic effect which is based on asymmetric grating structure. The linear response for electromagnetic-wave in IR-visible region was calculated by using FDTD method. The motion of charges in metal part of the metamaterial was modeled by a free electron in electromagnetic fields to give the displacement from equilibrium position. We estimated the second order nonlinear susceptibility  $\chi^{(2)}$  to be  $\sim 10^7$  pm/V in the frequency region in which E field is asymmetrically distributed in the metal part in the unit cell. It was found that the nonlinearity in thin layer of the metamaterial was comparable to that in the bulk of nonlinear crystals.

### 1. はじめに

メタマテリアルは微細加工技術の進歩に伴い作製が可能になってきたサブ波長スケールの人工構造であり、負の屈折率を持つ媒質など自然界に存在しない光学定数を持つ媒質を人工的に設計できる可能性があることから注目を集めている。これまで我々の研究グループでは非対称なフォトリック結晶構造に光を入射することで第二高調波発生や光整流効果（光誘起起電力）といった2次の非線形光学応答が起こることを明らかにしてきた。[1], [2]

一方で近年の超短パルスレーザーや非線形光学の技術の進歩に伴いテラヘルツ (THz) 帯域の光の発生や検出ができるようになってきた。THz帯には多くの物質でその物質固有の振動モードがあることから基礎物理にとどまらず、セキュリティ応用をはじめとした産業応用など幅広い分野での研究が行われている。[3] ~ [8]

それに伴い、広い応用に向けて簡便で使いやすい THz 光源が求められているが、THz 帯の振動モードが逆に広帯域、高効率に利用できる材料を制限しており、光学素子が可視域や通信帯に比べ不足しているのが現状である。THz 波発生に人工構造における非線形光学効果を利用する方法はすでに報告されており、ナノスケール金属における電場集中と界面における非線形光学効果として捉えられている。[9] 本研究では非線形応答を示す人工構造を非線形メタマテリアルとして捉える。メタマテリアルにおける2次の非線形光学効果、特に差周波発生の特性を明らかにすることで高効率、広帯域な THz 発生デバイスを作製することを目指している。本研究で扱う金属誘電体メタマテリアルは金属部分の高い自由電荷密度、高い移動度を利用できることから比較的大きな非線形分極が得られるものと期待している。

また、一般の非線形光学結晶においては2次

非線形過程はミラー則 [10] によりその非線形感受率の大きさは線形感受率から予想できるとされている。メタマテリアルという人工的にデザインされた構造においてもそれが成り立つかどうかは興味深い。そのための一歩としてここでは数値的に評価した金属誘電体メタマテリアルの 2 次の非線形感受率について報告する。

## 2. 非線形分極

金属誘電体メタマテリアルの非線形感受率を調べるために光が入射したときにできる非線形分極を求める。今考える状況を図 1 に示す。簡単のため考える金属誘電体メタマテリアルは 1 次元グレーティング構造で  $x$  方向に関して非対称な金属線が  $y$  方向に一様に伸び、誘電体基板上にあるような系を考える。差周波発生過程を考えるために、励起光として  $x$  方向に偏光した角周波数  $\omega_1$ 、 $\omega_2$  の 2 つの光を入射させる。金属内の電荷は自由電荷として取り扱い、励起光による電場分布の影響で自由電荷は力を受け分極する。本研究では励起光の作り出す具体的な電場分布は後で述べるように電磁界シミュレータを用いて計算した。ここでは 2 次の非線形分極の定式化を行う。

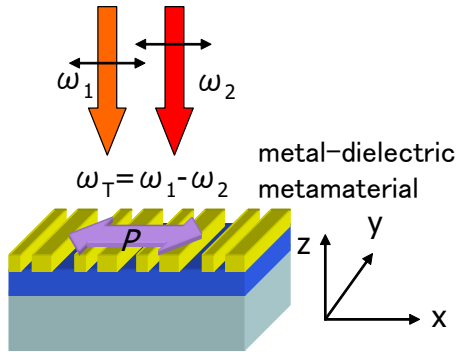


図 1 スキーム。 $\omega_1$ 、 $\omega_2$  の光が非対称な金属誘電体メタマテリアルに垂直入射し、金属部に非線形分極が誘起される。

電場  $E$ 、磁場  $B$  中の自由電荷に対する運動方程式は

$$m\ddot{\mathbf{r}} + m\gamma\dot{\mathbf{r}} = q(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}} \times \mathbf{B}) \quad (1)$$

と書ける。ここで  $\mathbf{r}$  は電荷の位置座標、 $m$  は電荷の (有効) 質量、 $\gamma$  は電子の運動の現象論的減衰定数である。これを電場の 1 次の項まで取り扱くと線形感受率

$$\alpha(\omega) = -\frac{q^2}{m\omega(\omega + i\gamma)} \quad (2)$$

を用いて

$$\mathbf{r} = \frac{\alpha(\omega)}{q} \mathbf{E} \quad (3)$$

と書ける。電場として

$$\mathbf{E} = A_1 e^{-i\omega_1 t} + A_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c. \quad (4)$$

のように 2 つの異なる振動成分があるとき式 (1) を電場の 2 次に関係する項まで展開し、差周波発生過程を考え振動成分  $\omega_T = \omega_1 - \omega_2$  について整理すると

$$\mathbf{r} = \frac{\alpha(\omega_T)}{q} \left\{ (\mathbf{r} \cdot \nabla) \mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}} \times \frac{1}{i\omega} (\nabla \times \mathbf{E}) \right\}_{\omega_T} + c.c. \quad (5)$$

と書ける。右辺において、 $\mathbf{r}$  は式 (3) で表される電場に対する 1 次の変位であり、下付きの添え字はさまざまな振動成分のうち  $\omega_T$  で振動する成分を表す。

式 (3)、式 (4) を右辺に代入し、入射光の偏光が  $x$  方向を向いていること ( $E_y = 0$ )、 $y$  方向に媒質は一樣であること ( $\frac{\partial}{\partial y} = 0$ ) を用いると電荷の変位の  $x$  成分は

$$r_{x\omega_T} = \frac{\alpha(\omega_T)}{q} \left[ \frac{\alpha(\omega_1)}{q} \left\{ A_{1x} \frac{\partial A_{2x}^*}{\partial x} + \left(1 - \frac{\omega_1}{\omega_2}\right) A_{1z} \frac{\partial A_{2x}^*}{\partial z} + \frac{\omega_1}{\omega_2} A_{1z} \frac{\partial A_{2z}^*}{\partial x} \right\} + \frac{\alpha^*(\omega_2)}{q} \left\{ A_{2x}^* \frac{\partial A_{1x}}{\partial x} + \left(1 - \frac{\omega_2}{\omega_1}\right) A_{2z}^* \frac{\partial A_{1x}}{\partial z} + \frac{\omega_2}{\omega_1} A_{2z}^* \frac{\partial A_{1z}}{\partial x} \right\} \right] e^{-i\omega_T t} + c.c. \quad (6)$$

となる。ここで電荷の変位が作る分極は電荷密度を  $N$  として

$$\mathbf{P} = Nq\mathbf{r} \quad (7)$$

であり、差周波発生の非線形分極は

$$\mathbf{P} = \epsilon_0\chi^{(2)}\mathbf{E}_1\mathbf{E}_2^* \quad (8)$$

と書けるから、両者を比較すると今考えている  $x$  方向に電場を入射し、 $x$  方向に振れる分極は

$$\chi_{111}^{(2)} = Nqr_x/\epsilon_0E_{1xin}E_{2xin}^* \quad (9)$$

として見積もれる。ただし  $E_{ixin}, (i = 1, 2)$  は系に入射する電場の  $x$  成分である。ここで  $\chi^{(2)}$  の応答の形について見ておくと式 (6) に比例している。式 (6) の右辺について、ミラー則と比較すると  $\alpha(\omega_T), \alpha(\omega_i) (i = 1, 2)$  の部分は金属を構成する物質に依存する応答関数なのに対し、 $\{, \}$  の中の項は金属中にできる電場の分布に依存しており、人工的に制御できる部分である。このことはメタマテリアルにおける非線形光学定数はミラー則に制限されずにデザインできうることを示唆している。

### 3. 構造と数値計算

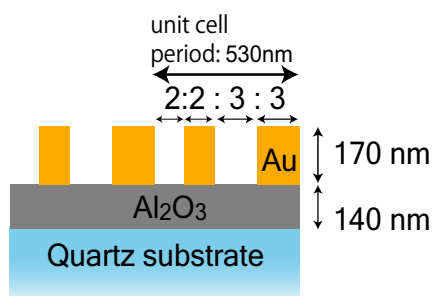


図 2 計算に用いた非対称金属誘電体メタマテリアルの構造

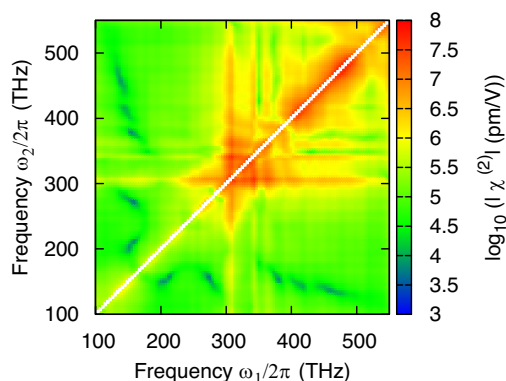


図 3 非線形感受率スペクトル

式 (6) に出てくる金属内の電場分布を求めために市販の電磁界 FDTD シミュレータを用いた。図 2 に計算に用いた構造をしめす。石英基板上にアルミナの薄膜があり、その上に金の非対称グレーティング構造が積層している。ユニットセルの長さは 530nm であり、それよりも長い領域の波長に対する応答を調べる。この構造は非回折領域の 800nm 付近に表面プラズモンポラリトンモードが有り、そのモードに対応する励起光波長を選ぶことで金属内の電場分布を大きく変調できることが期待できる。シミュレーションでは 100-550THz (545nm-3 $\mu$ m) の範囲での線形な周波数応答から金属内の各位置における電場分布を求めた。求めた電場分布に対して式 (9) を用いて各周波数に対する非線形感受率スペクトルを計算した。

その結果を図 3 に示す。図は横軸、縦軸がそれぞれ  $\omega_1, \omega_2$  の周波数で求めた  $\chi^{(2)}$  の値の絶対値を対数表示したものである。単位は非線形感受率の評価に頻繁に使われる (pm/V) である。二つの入射光が等価であることから  $\omega_1 = \omega_2$  を境に対称的なスペクトルになっている。これをみると  $\omega_1$  が 308、345THz において筋状の構造が現れている。この周波数が表面プラズモンポラリトンモードに相当し、共鳴により電場分布を変調することで、大きく、広帯域な非線形感受率をもたらしている。また、400 から 500THz において周波数差の低い領域では比較的大きな非線形性が見て取れる。これは金のプラズマ端がこの周波数帯に有り電

場が金属内部までしみこむことで金属内の電場分布を大きく変調していることによる。なお周波数差が0の極限では式(3)が発散するため計算を行っていない。

次に非線形感受率の値に関して注目すると大きいところでは $\chi^{(2)} \sim 10^7$  pm/V という値になっている。一般的な非線形光学結晶であるLiNbO<sub>3</sub>の非線形感受率が $\chi_{32}^{(2)} = 2d_{32} = -60$  pm/Vであることと比較するとおよそ $10^5$ 倍も大きな値を示している。このことは本研究で提案する金属誘電体メタマテリアルの非線形過程が高々170nmの薄い金属中でおこり、非線形結晶における非線形光学効果が $\sim 10$ mmのバルクでおこることを勘案しても非線形メタマテリアルが十分大きな非線形性を示しう

ることを示唆している。

#### 参考文献

- [1] T. Isihara, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 253901 (2003)
- [2] T. Hatano, *et al.*, Opt. Express **16**, 8236 (2008)
- [3] T. Mori, *et al.*, Phys. Rev. B **79** 212301 (2009)
- [4] Dekorsky, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 05508 (2003)
- [5] H. Yoneyama, *et al.*, Opt. Commun. **281**, 1909 (2008)
- [6] K. Kawase, *et al.*, Opt. Exp. **11**, 2549 (2003)
- [7] K. Fukunaga, *et al.*, IEICE Electron. Express **4**, 258 (2007)
- [8] S. Ohno, *et al.*, J. Eur. Opt. Soc. Rapid Publ. **4**, 09012 (2009)
- [9] G. H. Welsh, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 026803 (2007)
- [10] R. W. Boyd, Nonlinear Optics 3rd Edition, Academic Press (2008)