

Title	光メタ表面における共鳴電磁場の大規模数値計算
Author(s)	岩長, 祐伸
Citation	サイバーメディアHPCジャーナル. 2015, 5, p. 27-30
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/70497
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

# 光メタ表面における共鳴電磁場の大規模数値計算

岩長 祐伸 物質・材料研究機構

#### 1. はじめに

2000年以降、ナノテクのキーワードのもとに人工 ナノ構造の研究が盛んになって15年が経つ。物理、 化学、バイオなどの広い分野で多様なナノテクノロ ジーが進展してきたが、その1つにメタマテリアル と名付けられた人工的なサブ波長周期構造で電磁波 を制御する研究分野がある。電磁波が光である場合 を考えると、その波長は空気中で 500 nm 程度である から、サブ波長は 500 nm 以下、典型的には数分の1 程度を意味するので、人工ナノ構造で光を制御する ことになる。この精度で人工構造を作製するために は電子線描画リソグラフィ法と同程度以上のナノ加 工精度が必要となり、3 次元的に集積することは非 常に困難である。したがって、数層程度の構造で光 メタマテリアルを作製することが現実的になる。こ の光の波長より薄いメタマテリアル構造は表面構造 と見なすこともでき、メタ表面と呼ばれる。



図1:基板上に作製されたメタ表面と照射される電磁波 (光)の波長の関係。厚さ *d* << 波長。周期 *a* はサブ波長 から波長程度が想定される。メタ表面は金属(金色)と絶 縁体(水色)からなることを模式的に示している。

第一原理的に考えると、電磁波と電磁波に対する 人工ナノ構造の応答は量子電磁気学の範疇に入るが、 実用的な計算としては古典電磁気学に基づいて計算 を実行すれば、実験データを再現できる場合がほと んどである。逆に、量子電磁気学的な効果が明示的 に確認されたメタマテリアルおよびメタ表面はこれ まで報告されたことがない。したがって、電磁波の 対するマクスウェル方程式を人工ナノ構造に適用し て解くことが基本方針となる。図1に概念図を示す ように人工ナノ周期構造は不均一な電磁波媒体であ るから、境界条件および電磁波の固有モードが複雑 になる。このため数値計算が大規模化し、大きな計 算量とメモリを必要とすることになる。筆者はこの 10 年近く人工ナノ周期構造における電磁場を数値 的に高精度に求めることを行ってきた。なお、参考 文献[1]ではこれまでの適用例や MPI 化による高速 化などの進展が年次順に報告してきた。

## 2. 計算アルゴリズム: RCWA 法+散乱行列法

周期構造におけるマクスウェル方程式の解法として、空間座標 r と時間 t からフーリエ変換

$$(\mathbf{r},t) \rightarrow (\mathbf{k},\omega)$$
 (1)

によって、波数ベクトル k と周波数ω に変数変換す るのが便利である。図1にも示しているように平面 波は波数ベクトル k で向きが指定され、その電場ベ クトルも

$$\mathbf{E} \propto \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t) \tag{2}$$

と表されるからである。マクスウェル方程式をフー リエ変換表示することで、方程式をフーリエ係数の 行列方程式に書き換えることができる点も数値計算 を実行するうえでの利点である。

しかしながら、金属を含むナノ構造では単純にフ ーリエ変換しても数値計算が収束しないことが 1970年代から1990年代後半までの30年間近くにわ たる難題であった。その解決法が最終的に示された のは1997年である[2]。手短にその方法について述 べる。例として、マクスウェル方程式の1つ

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial [\mu_0 \mu \mathbf{H}(\mathbf{r}, t)]}{\partial t}$$
(3)

について周期構造が xy 面に平行に広がっているとして、式(3)の y 成分を E<sub>x</sub>を消去して書き下すと、

$$\partial_{z}E_{x} = i\omega\mu_{0}H_{y} - \frac{1}{i\omega\varepsilon_{0}}\partial_{x}\left[\frac{\partial_{x}H_{y} - \partial_{y}H_{x}}{\varepsilon(x, y)}\right] \quad (4)$$

となる。ここで H は磁場ベクトル、 $\mu_0$  は真空中の透 磁率、 $\mu$  は物質によって決まる非透磁率(本稿では 1 に等しい)、 $\epsilon_0$  は真空中の誘電率、 $\epsilon$  は非誘電率で 周期構造を反映して  $x \ge y$ の関数である。各周期層 内において電磁場成分は

$$E_{x}(x, y, z) = \sum_{m,n} E_{xmn}(z) \exp(i\alpha_{m}x + i\beta_{n}y) \quad (5)$$

のように周期関数  $\exp(i\alpha_m x + i\beta_n y)$  を使って表現で き、 $E_{xmn}$  がフーリエ係数である。ただし、x 方向の 周期を $a_x$ 、y 方向の周期を $a_y$ とすると、整数m とnを用いて $\alpha_m = k_x + 2\pi m/a_x$ ,  $\beta_n = k_y + 2\pi n/a_y$  である。 なお、図1では3層の周期積層構造からなっている。 式(4)を逆積ルール[2]を用いて正しくフーリエ変換 表示すると、

$$\frac{\omega\varepsilon_0}{i}\partial_z E_{xmn} = \frac{\omega^2}{c^2}H_{ymn} - \alpha_m \sum_{j,l} \left[\!\left[\varepsilon\right]\!\right]_{mn,jl}^{-1} (\alpha_j H_{yjl} - \beta_j H_{xjl})$$
(6)

となる(c:は真空中の光速)。式(6)で不連続関数 1/ε を行列化したものではなく、εで行列化した後、逆行 列を取っていることが分かる。これが逆積ルール

(Inverse Fourier factorization) と呼ばれる式変形であ る。数学的には単純なフーリエ変換が各点収束であ るのに対して、逆積ルールを使うと概ね一様収束と なる。このため、数値計算における収束速度に格段 の向上が見られる。余談ながら、数理現象を記述す る方程式において、不連続な係数(物質定数など) が物理量と積になって現れることはよくある。した がって、電磁場の方程式に限らず、この逆積ルール は有効であると考えられる。

さて、式(6)のようなフーリエ係数表示のマクスウ ェル方程式をまとめると次式のようになる。

$$\partial_{z} \begin{pmatrix} \langle E_{x} \rangle \\ \langle E_{y} \rangle \\ \langle H_{x} \rangle \\ \langle H_{y} \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & F \\ G & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle E_{x} \rangle \\ \langle E_{y} \rangle \\ \langle H_{x} \rangle \\ \langle H_{y} \rangle \end{pmatrix}$$
(7)

ただし、電磁場のフーリエ係数ベクトルを 〈●〉 と表示している。式(7)は各周期層における電場固有モー

ドを解くための固有方程式であり、数値計算に適し た行列形式に書き換えられている。式(7)の固有ベク トルが電磁固有モードの電磁場分布を表す。実際の 数値計算では式(5)の Floquet-Fourier 展開を数百次 までとることになるため、式(7)右辺の行列は最終的 に 10000×10000 次の一般複素数行列となる。このた め、大きな計算量とメモリが必要となるのである。 実際の計算では式(7)をさらに変形してサブ行列Fと 同じ次数の固有値方程式に縮約して計算量を落とす ことになるが、ここでは割愛する。

一般のメタ表面は周期層の任意の積層構造からな るため、各周期層の固有モードを数値的に発散しな いように散乱行列アルゴリズム[3]を使って、入射波 に対するメタ表面としての応答を算出することにな る。この際に多数の行列演算が生じる。従って、大 規模数値計算を実行する上で行列演算を得意とする ベクトル型のスーパーコンピュータが望ましいこと もあり、筆者は SX-9 を使用してきた。

この節で述べた方法は Rigorous Coupled-Wave Analysis (RCWA) 法または Fourier Modal Method と 呼ばれている。散乱行列アルゴリズムと組み合わせ ることで汎用的に周期構造を数値できるソフトウェ アとして市販されている。直接比較したことはない ものの種々の情報を総合すると、筆者が行ったスー パーコンピュータ上での実行はメモリの制約が少な く (SX-9 では最大 1 TB が使用可能だった)、大規模 かつ高精度、高速に実行できる長所があった。

## 3. メタ表面の研究例

この節では、前節の方法を実際にメタ表面に適用した最近の結果を紹介する。

メタ表面ではわずか数層で光を完全に吸収できる 構造を設計することができる。図2は厚さ250 nm 程 度のシリコン(Si) 平板に穴開けナノ加工[4]を施し た後、金(Au)を垂直蒸着して作製するメタ表面の 模式図を示している[5-7]。円孔の周期は410.5 nm と して、円孔直径は190 nm から300 nm の間でナノ加 工上の工夫によって制御した[7]。設計の意図として は Si 平板に円孔の開いたフォトニック結晶平板と 上下層にある金のナノ構造が組み合わさることで、 電磁固有モードもフォトニックモードとプラズモニ ックモードが混合することで新しい共鳴状態が現れ ることを期待した。



図2:メタ表面概念図。Si 平板(厚さ250 nm 程度)に穴 開けナノ加工した後、Au 蒸着によって作製した。図は[7] から引用。

このメタ表面は反射光のみが生じる反射型表面で あり、反射スペクトルを図 3(a)(b) に示している(a: 測定、b:数値計算)。図中の1~6はそれぞれ1次か ら6次の共鳴モードを示している。スペクトル形状 の特徴が測定と実験でよい一致を示している。



図3:(a) 測定反射スペクトル。(b) 数値計算による反射 スペクトル。(a),(b)は[6]から引用。(c) 光吸収スペクトル。

反射率Rから光吸収率Aを

A

$$=100 - R(\%)$$
 (8)

によって求めることができ、数値計算による光吸収 スペクトルを図 3(c) に示している。後出の実験に対 応して Si 平板の厚さを 200 nm とした。光吸収が 80% を超える共鳴モードが複数あり、とくに 6 次モード は 100% に近い光吸収率を示している。

図4は6次の共鳴電磁場分布を示している。図2 のxz断面を見ている。入射光をx偏光としているの で、(a) *E*<sub>x</sub>成分、(b) *H*<sub>y</sub>成分のスナップショットを示 している。共鳴的な電場は円孔と底の Au 円板に局 在し、共鳴磁場は高次のフォトニック導波路モード の特徴を有している。このようにプラズモン共鳴と フォトニック導波路モードが混成した新しい電磁場 モードがこのメタ表面の特徴である[6]。



図4:6 次の共鳴電場分布 (スナップショット)。(a)  $E_x$ 成分。(b)  $H_y$ 成分。入射光は  $E_x=1, H_y=1$  と設定した。(a), (b) は[6]から引用。

図2のメタ表面における高い光吸収率のモードは 同時に高放射率モードでもある(キルヒホッフの法 則)[8]。したがって、メタ表面上に置かれた量子発 光体は通常の環境(例えば平坦基板上)と比べて顕 著な発光増強を示すことが期待される。実際に発光 増強効果があるかを検証する実験を行った。

図5は発光増強実験結果の一例である。図5(a)は 有機色素分子を分子が個別かつ離散的に分散する程 度の低濃度の溶液をメタ表面上に微量分散する概念 図を示している。中央付近の青い1 cm 四方がメタ表 面である。人工ナノ構造の大面積な作製は UV なお インプリント法によって実施した[5]。ピペットで分 散した微量溶液は即座に基板全面に広がり、空気中 で速やかに乾燥した。図 5(b)はメタ表面上での観測 された発光 (FL) スペクトル (赤線) と平坦な Au 膜上で観測された蛍光スペクトルを示している。用 いたメタ表面は円孔直径 (D) 250 nm であり、その測 定反射スペクトルを破線で示している。記号(2)、(3) はそれぞれ2次、3次の共鳴モードを意味している。 図 5(b)では 100 倍を超える発光強度の増強が観測さ れ、とくに 990 nm では 450 倍に達している。大きな 発光増強効果は、分子の蛍光センシング用の基板と して、このメタ表面が有望であることを示している。 高い感度が得られたことから、短時間の検出・診断 への応用が期待できると考えている。



図5:(a) 実験模式図。(b) 発光増強を示す蛍光(FL) スペクトル(実線)。使用したメタ表面の測定反射スペクトル(破線)。記号(2)、(3)はそれぞれ2次、3次共鳴を示している。(b)は[7]から引用。

## 4. まとめと展望

本稿ではメタ表面における電磁場計算法について 概説し、蛍光センシング基板として有望なメタ表面 の実例について実験結果を交えて述べてきた。

このほかにも光学顕微鏡の空間分解能力を超解像 まで高めるメタマテリアルレンズアレーの研究[9] や二酸化炭素のその場検出ができる2波長赤外光源 メタ表面の研究 [10] など特色あるメタマテリアル、 メタ表面の研究を行った。 SX-ACE に移行してメモリ上限が大幅に下がり、 従来のコードはそのまま使用できなくなったが、ご く最近メモリ圧縮版のコードも NEC 社の協力で実 装できた。さらなる研究の進展に活用できるものと 期待している。

#### 謝辞

本研究の数値計算は HPCI システム研究プロジェ クトの支援を受け(ID: hp140068)、大阪大学サイバ ーメディアセンターの SX-9 上で実行する際にはジ ョブ時間制限などの変更に柔軟な対応をいただきま した。これらの支援にこの場を借りて感謝申し上げ たい。また、本稿で紹介した一連のメタ表面の研究 は文部科学省科研費 20109007 と日本学術振興会科 研費 26706020 の助成を受けました。

# 参考文献

- (1) 岩長祐伸、東北大学サイバーサイエンスセンタ 一大規模科学計算システム広報(SENAC) 39 (3), 25-32 (2006); 40 (3), 5-14 (2007); 41 (3), 43-51 (2008); 42 (4), 9-18 (2009); 44 (2), 49-56 (2011); 45 (3), 9-16 (2012); 46 (4), 13-18 (2013).
- (2) L. Li, J. Opt. Soc. Am. A 14, 2758–2767 (1997).
- (3) L. Li, J. Opt. Soc. Am. A 13, 1024–1035 (1996).
- (4) B. Choi, M. Iwanaga, T. Ochiai, H. T. Miyazaki, Y. Sugimoto, and K. Sakoda, Appl. Phys. Lett. 105, 201106 (2014).
- (5) B. Choi, M. Iwanaga, H. T. Miyazaki, K. Sakoda, and Y. Sugimoto, J. Micro/Nanolith. MEMS MOEMS 13, 023007 (2014).
- (6) M. Iwanaga and B. Choi, Nano Lett. 15, 1904–1910 (2015).
- (7) M. Iwanaga, B. Choi, H. T. Miyazaki, Y. Sugimoto, and K. Sakoda, J. Nanomater. **2015**, 507656 (2015).
- (8) J.-J. Greffet and M. Nieto-Vesperinas, J. Opt. Soc. Am. A 15, 2735–2744 (1998).
- (9) M. Iwanaga, Appl. Phys. Lett. 105, 053112 (2014).
- (10) H. T. Miyazaki, T. Kasaya, M. Iwanaga, B. Choi, Y. Sugimoto, and K. Sakoda, Appl. Phys. Lett. 105, 121107 (2014).