

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	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

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。

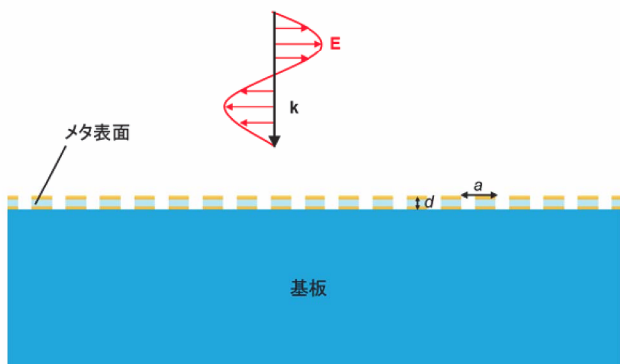


図1：基板上に作製されたメタ表面と照射される電磁波（光）の波長の関係。厚さ $d \ll$ 波長。周期 a はサブ波長から波長程度が想定される。メタ表面は金属（金色）と絶縁体（水色）からなることを模式的に示している。

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 \mathbf{r} と時間 t からフーリエ変換

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

によって、波数ベクトル \mathbf{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 \mathbf{k} で向きが指定され、その電場ベクトルも

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

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年間近くにも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

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

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

$$\partial_z E_x = i\omega\mu_0 H_y - \frac{1}{i\omega\epsilon_0} \partial_x \left[\frac{\partial_x H_y - \partial_y H_x}{\epsilon(x,y)} \right] \quad (4)$$

となる。ここで \mathbf{H} は磁場ベクトル、 μ_0 は真空中の透磁率、 μ は物質によって決まる非透磁率（本稿では 1 に等しい）、 ϵ_0 は真空中の誘電率、 ϵ は非誘電率で周期構造を反映して x と 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、

$$\frac{\omega\epsilon_0}{i} \partial_z E_{xmn} = \frac{\omega^2}{c^2} H_{ymn} - \alpha_m \sum_{j,l} [\epsilon]_{mm,jl}^{-1} (\alpha_j H_{yjl} - \beta_j H_{xjl}) \quad (6)$$

となる (c : は真空中の光速)。式(6)で不連続関数 $1/\epsilon$ 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。

$$\partial_z \begin{pmatrix} \langle E_x \rangle \\ \langle E_y \rangle \\ \langle H_x \rangle \\ \langle H_y \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & F \\ G & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle E_x \rangle \\ \langle E_y \rangle \\ \langle H_x \rangle \\ \langle H_y \rangle \end{pmatrix} \quad (7)$$

ただし、電磁場のフーリエ係数ベクトルを $\langle \bullet \rangle$ 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、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せることで、

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。

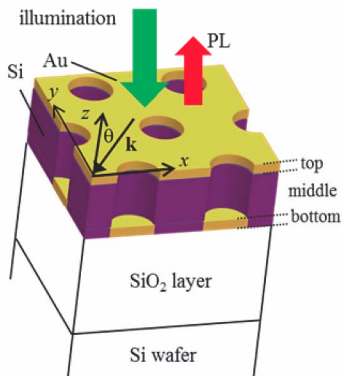


図2：メタ表面概念図。Si 平板（厚さ 250 nm 程度）に穴開けナノ加工した後、Au 蒸着によって作製した。図は[7]から引用。

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。

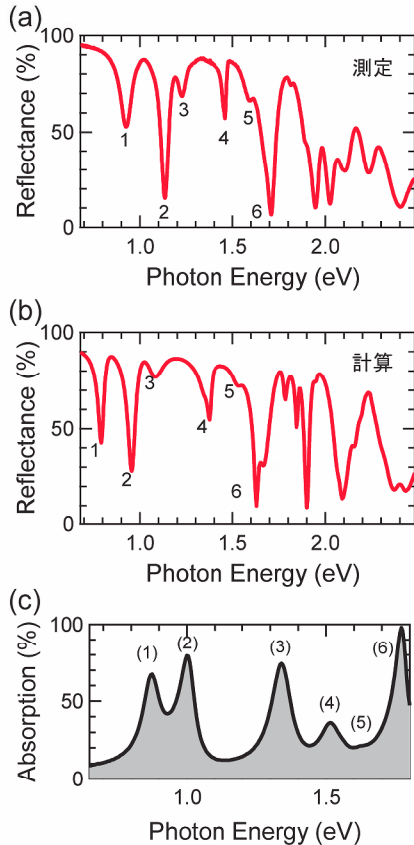


図3：(a) 測定反射スペクトル。(b) 数値計算による反射スペクトル。(a), (b)は[6]から引用。(c) 光吸収スペクトル。

反射率 R から光吸収率 A を

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

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_x 成分、(b) H_y 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]。

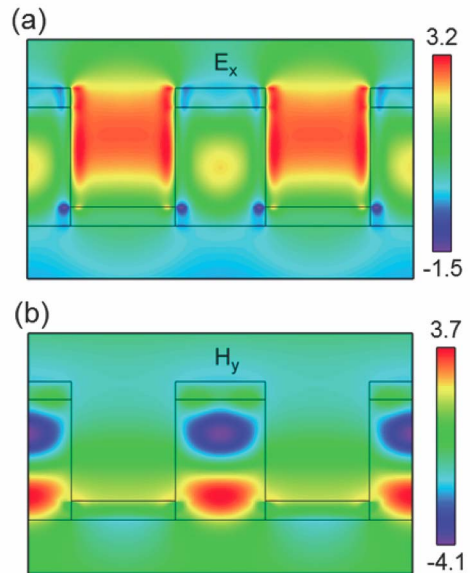


図4：6次の共鳴電磁場分布（スナップショット）。(a) E_x 成分。(b) H_y 成分。入射光は $E_x=1, H_y=1$ と設定した。(a), (b)は[6]から引用。

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的环境（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。人工ナノ構造の大量な作製は 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、空气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 膜上で観測された発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、分子の発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。

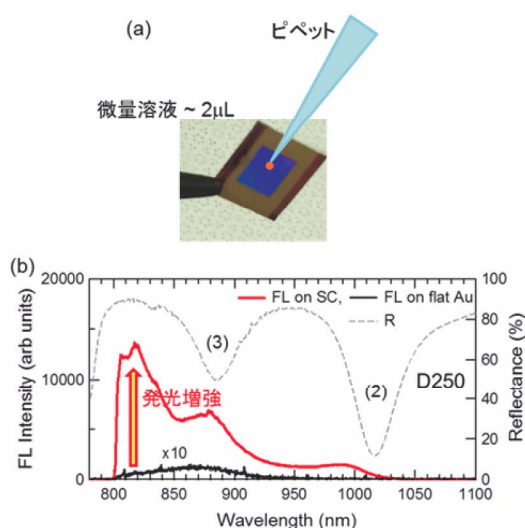


図 5 : (a) 実験模式図。(b) 発光増強を示す発光 (FL) スペクトル (実線)。使用したメタ表面の測定反射スペクトル (破線)。記号(2)、(3)はそれぞれ2次、3次共鳴を示している。(b)は[7]から引用。

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、発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ます。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ー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).