

[共同研究成果]

プラズモニック構造体による光エネルギー利用の効率化

岩長 祐伸

物質・材料研究機構, 科学技術振興機構さきがけ

形状に応じて多彩な共鳴状態を発現するプラズモニック構造体は金属ナノ構造から構成され, ナノサイズで光を吸収し自身の励起状態に変換することができる. これまでに SX-9 上での運用に最適化および MPI 化を実施してきた電磁波散乱行列法のコードはプラズモニック構造体の線形光学応答を高精度に計算できる特長を有するほか, 固有モードの解明にも有用である. 本稿では, 効率的な光エネルギー利用に関する最近の結果と運用に必要な計算リソースについて述べる.

1. はじめに

電磁気学の第一原理であるマクスウェル方程式を様々な対象に対して数値的に解くことが可能になったのは比較的最近のことである. 最も長い間, 数値的な計算法を確立できなかった対象は, 回折格子のような金属を含むプラズモニック構造体である. その数値計算アルゴリズムが 3 次元周期構造まで含めた形で一連の論文が全て発表されたのは 1997 年であるから [1,2], 多くの読者にとっては意外かもしれない. マクスウェル方程式が確立した 1800 年代の終わり [3] から約 1 世紀を経て, ようやく計算法が開発されることになる. 金属を含む周期構造体に対するマクスウェル方程式を解くためにはフーリエ級数展開した方程式を解くことになり, 現在 RCWA (Rigorously Coupled Wave Approximation) 法の名前で比較的よく知られている. フーリエ変換した方程式を有限次で切断して計算することは広く行われているため容易に実行できそうに思われるが, プラズモニック構造体に対するフーリエ級数展開されたマクスウェル方程式を単純に切断した場合, 計算結果が現実的な切断次数では収束しない. そのため, 1997 年までの約 30 年間にわたって数値計算の難問として多くの研究者の挑戦を退けてきたのである.

プラズモニック構造体の特色はナノサイズの極微小構造によって, 光エネルギーを非常に効率良く吸収してプラズモニック共鳴の励起に使うことができる点にある. 図 1 はプラズモニック構造体 (金色と水色のサンドイッチ構造) の一例と光の波長の大小関係を模式的に描いている. 金色が金属, 水色が絶縁体を表している. 赤線で 1 周期を表した光の波長は構造周期長 a や厚さ d よりも長い.

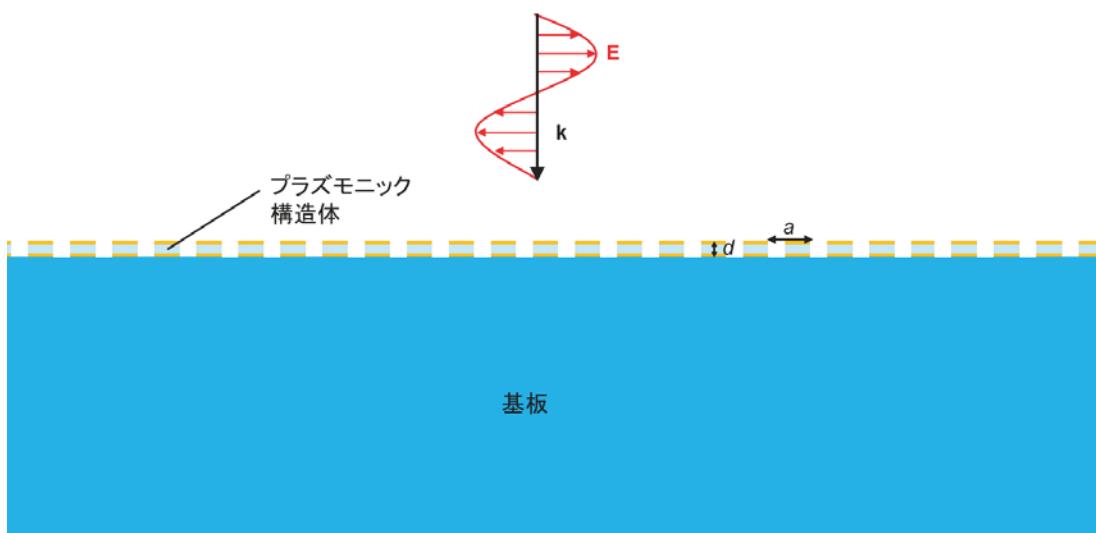


図 1 プラズモニック構造体と入射波長の大小関係.

図 1 で例示したプラズモニック構造体は横方向に周期的で、紙面に垂直な方向に無限に長い 1 次元周期的な構造を模しており、このようなナノ構造体は通常基板上に作製する。周期長 a は光の波長と同程度かそれより短い場合が多く、厚さ d に関しては光の波長の 1/10 程度であることが多い。したがって薄い構造であるが、照射される光エネルギーの数十%から百%をこのナノ構造体で吸収し、局所的な増強電磁場に変換することができる。増強効果は金属内部の伝導電子の集団的な励振状態であるプラズモニック共鳴によって発現する。光エネルギーを特定の位置近傍で使うことを可能にすることから、ラマン散乱などの光散乱増強、光電変換素子の変換効率向上など様々な応用が期待されている。周期系に限定しないプラズモニック構造体を用いた研究分野は「プラズモニクス」と呼ばれて、現在世界中で精力的に研究が行われている。

本稿では最近のプラズモニック構造体の結果から光エネルギー利用に適した具体的な構造をいくつか紹介し（第 2 節）、数値計算を実施する際の実行容量について述べる（第 3 節）。

2. プラズモニック構造体における光エネルギーの利用効率

プラズモニック構造体の反射率や透過率を計算するアルゴリズムやコード自体については本誌上でたびたび報告してきた [4–9] ので繰り返すことは避けるが、フーリエ級数の係数行列に逆積ルールを適用することにより現実的な時間内で計算を実行できる [7]。計算コードの SX-9 上での最適化に関して、ベクトル化率は早い段階から 99% 以上であった。MPI 化による並列化率の向上については昨年本誌上で述べたように所望の成果が得られている [9]。

図 2(a) は金属 (M)、絶縁体 (I) がサンドイッチ状に積層した MIM 構造に空気スリットが入った構造を示している。周期は 830 nm、空気スリットの幅は 200 nm である。金属は金 (Au)、絶縁体はアルミナ (Al_2O_3) として文献値 [10] の誘電率を用いて電磁波散乱行列を数値計算した。

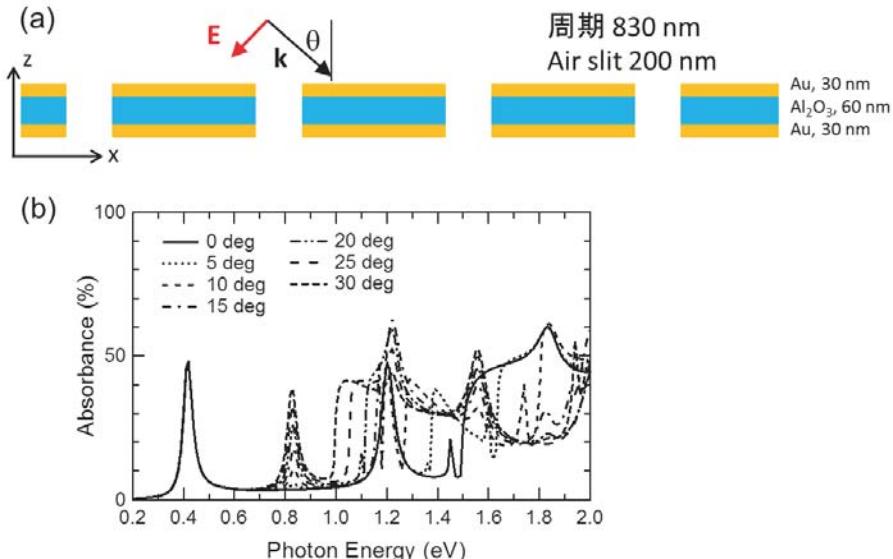


図 2 (a) 1 次元周期の空気スリット貫通型の MIM 導波路構造。基板の図示は省略してある。(b) 入射光角度に依存した吸収スペクトル。

図 2(b) はプラズモニック構造体の光吸収スペクトルを示している。入射平面波の角度 θ を 0 度から 30 度まで 5 度おきに変えて算出したものであり、偏光は図 2(a) に示すように p 偏光である。光吸収 A は

$$A = 100 - \sum_{m,n} (R_{mn} + T_{mn}) \quad (1)$$

によって定義される（単位は%）。ただし、 m 、 n は整数で R_{mn} は mn 次の反射率、 T_{mn} は mn 次の

透過率を表している。00次は通常の反射率、透過率、00次以外は回折光成分に対応する。電磁波散乱行列法が直接算出するのは散乱電磁波成分の R_{mn} , T_{mn} である。エネルギー最低次のピーク(0.42 eV, 波長で 2951 nm)はほとんど入射角度に依存しないが、2次のピーク(0.82 eV, 1511 nm)は角度が大きくなるにしたがって吸収量を増していく特徴がある。とくに入射角度0度で2次共鳴を全く励起ができないことから電磁場分布が非対称なモードであることが分かる。0度入射光は対称な電磁場をもつことから、対称性の不一致で励起できないのである。

図3は空気スリット貫通型のMIM導波路構造における最低次モードの電磁場分布を可視化した結果である。図3(a)は電場分布を示しており、カラープロットは電場強度(絶対値)、赤矢印は電場ベクトルのスナップショットを示している。主に増強されているのは金属に挟まれた空気スリット部分であり、絶縁体層にも電場分布が存在していることが分かる。白矢印で示すように入射光は0度入射(垂直入射)であるが、絶縁体層内の電場ベクトルは入射電場が90度回転した向きになっている。

図3(b)は図3(a)と対応する磁場分布を示している。カラープロットが磁場強度(絶対値)を示している。磁場は金属で挟まれた絶縁体層部分に局在し、なおかつ増強されている。この例では10倍程度の増強効果がある。磁場ベクトルの向きは紙面と垂直である。

以上のように電磁場エネルギーはプラズモニック構造体内部および近傍に強く局在し、かつ入射光強度とカラープロットを比べると増強されていることが分かる。光を局所的な増強電磁場に変換している典型的な分布を図3は示している。高次の共鳴状態については電磁場分布がより複雑なパターンを示す。なお、電磁場分布の可視化には有限要素法を援用した[11]。

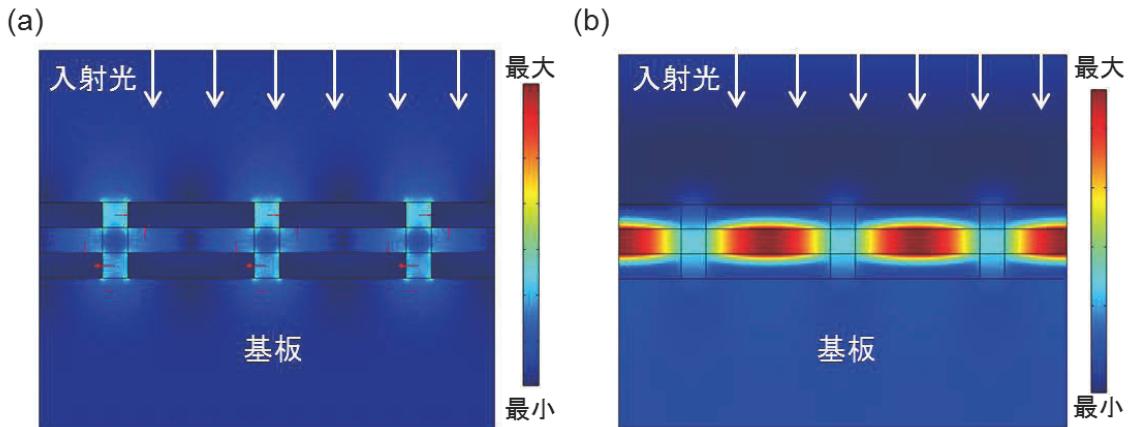


図3 空気スリット貫通型のMIM導波路構造の最低次共鳴。(a) 電場成分。(b) 磁場成分。

図4(a)のプラズモニック構造体はMIM導波路構造を基にしている点で図2(a)の構造と共通しているが、最表層のみが1次元周期的になっている点が異なる。周期は830 nm、空気スリットは200 nmである。金属層、絶縁体層の厚さも図2と共にである。

図4(b)には入射p偏光下の吸収スペクトルを示している。入射角度は0度から30度まで5度刻みで変えて計算した。この構造では光吸収量が図2(b)と比べて増加している。最大値で90%を超えるモードも存在し、光エネルギー利用がより効率的な構造であることが分かる。最低次と2次の共鳴モードについては定性的な振る舞いは図2の空気スリット貫通型と同様であり、最低次が対称モード、2次が非対称モードである。3次以上のモードに関して、入射光角度依存性が顕著でスペクトルが大きく変化することは回折光チャンネルが許容になることと対応している。回折光が入射角度に依存して色が変わることは目で見て確認できるが、共鳴モードの入射角度依存性を反映した現象である。

構造によって光吸収量にこのような違いがあることはプラズモニック構造体に局在する電磁場が主に絶縁体層に存在することを示唆している。図2の空気スリット貫通型では絶縁体層が周期

的に切り離されていたため、光の逃げが起こりやすく、結果として光吸収量が低いと考えられる。

以上のように構造が少し異なることで光学応答や光吸収が定量的に大きく変化することがプラズモニック構造体の面白さの一つである。それだけに構造設計には精度が求められ、SX-9のようなスーパーコンピュータで計算を実行することが必要となってくる。

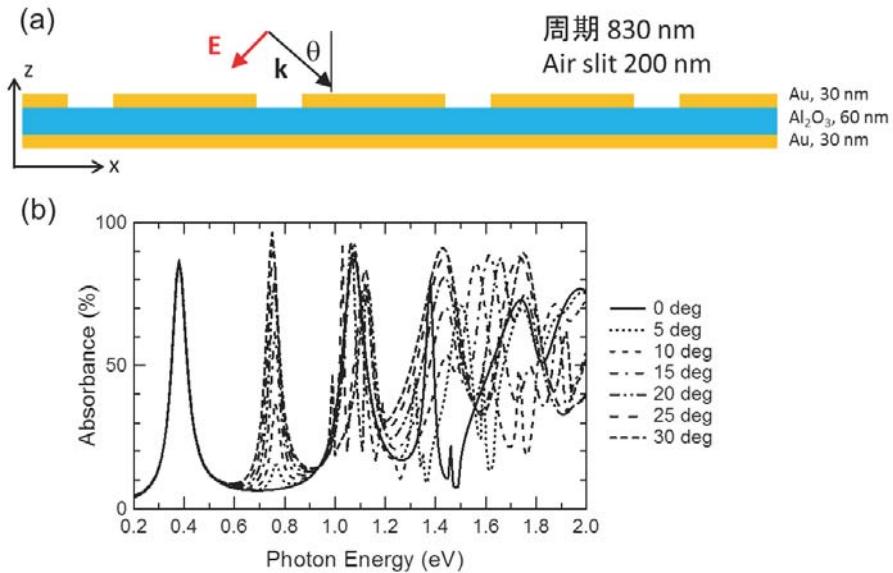


図4 (a) 最表層のみが1次元周期をもつMIM導波路構造。基板の図示は省略してある。(b) 入射光角度に依存した吸収スペクトル。

図5(a)はMIM導波路構造に2次元正方格子状に周期構造を導入したプラズモニック構造体を模式的に示している。金属層、絶縁体層の厚さは図2、図4と共に共通である。周期は830 nm、円孔直径は400 nmである。

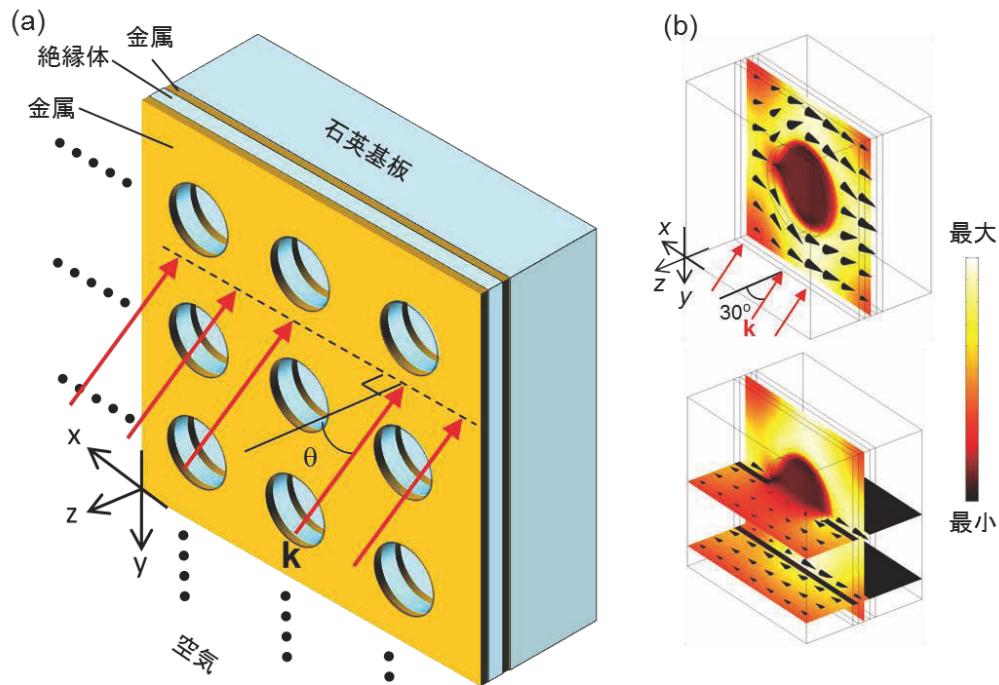


図5 (a) 2次元的な空気円孔配列を導入したMIM導波路構造。(b) 最低次モードを励起したときの電磁エネルギー密度流。

図 5(b) は最低次の共鳴状態を斜め入射下で励起したときの電磁エネルギー密度流を可視化したものである。この場合も図 3 と同様に絶縁体層に電磁エネルギーが集まり、伝搬する。伝搬の向きは黒い三角矢印で示している。下の水平断面から分かるように入射平面波の電磁エネルギーは $+x$ の向きに照射されているが、絶縁体層内では $-x$ の向きに流れている。つまり、入射光と逆向きの電磁波の流れが励起されている。これは負の群速度をもつ平面波モードであることを視覚化した結果である。筆者はこの特徴的な共鳴モードを波数とエネルギーの分散関係から詳しく解析した [13,14]。分散関係は吸収スペクトルの入射角度依存性から求めることができるので、電磁波散乱行列法の数値計算が本質的な役割を果たした成果と言える。

なお、図 5(a) の構造体はフィッシュネット・メタマテリアル [12] と呼ばれているもので、光学領域で初めて負の屈折率をもつとみなせる構造体として大きな注目を集めた。プラズモニック構造体の周期が光の波長よりも 1/2 以下に小さいときには回折光が生じないことから新しい媒体としてメタマテリアルと呼称されている。

3. SX-9 上での数値計算の実行容量

この節では電磁波散乱行列法の数値計算を実行する際に必要となったメモリや計算時間について述べる。

使用するメモリは主にフーリエ展開次数と構造体の単位胞を分割するグリッド数によって決まる [7,9]。1 次元周期系は計算量が少なく、図 2 や図 4 の場合では十分な精度を出すために±75 次程度とればよい。グリッド数も 2 と僅少であるため、必要なメモリは 0.6 GB 程度であった。吸収スペクトルはデータ点を多数回計算して得ており、1 点あたりの計算時間 (SX-9 の出力では Real Time) はジョブクラス s 上で約 3 秒であった。1 次元系だけであればスーパーコンピュータは必要というわけではない。

一方、2 次元系ではメモリ量が激増し、図 5 の場合ではフーリエ次数を xy 方向ともに±18 次までとったときにはメモリ 40 GB 程度、ジョブクラス p16 上で 548 秒／点の計算時間を要した。このときに扱う複素行列は 5476×5476 のサイズであった。同じ計算を MPI 化したコードで実行すると、p64 上では計算時間はほぼ 1/4 になる（ただし、メモリは約 4 倍必要になる）。したがって、2 次元系も含めて高精度かつ速やかな数値計算の実行のためには SX-9 のようなスーパーコンピュータが非常に有効である。

より大きな計算を実行した経験もあり、グリッド数が大きな場合は p16 上でメモリ 840 GB という計算もあった。SX-9 ですらノードメモリの上限に近い。このようにプラズモニック構造体を「解く」には SX-9 クラスの計算リソースが必要であると認識している。

最近では並列コンピュータが主流となってきているが、電磁波散乱行列法では一般複素行列の固有値、固有ベクトルを求める必要があり、この関数を並列化できないと並列コンピュータの長所を生かせない (N 並列なのに 1 CPU だけ稼働して $(N-1)$ CPU は休んでいるという事態に陥る)。幸い ASL 関数では並列版を開発していただいたので、理想的ではないものの並列化率はかなり高い。この点も SX-9 を使用する利点であると考えている。

4. まとめ

プラズモニック構造体の光学特性を解明するために電磁波散乱行列法を使って数値計算を実行した事例を中心に述べてきた。1 次元、2 次元系で全く異なる共鳴モードが発現すること、1 次元系でも単位胞の構造を少しかえると定量的には光吸収に大きな変化が生じることなどを示した。金属ナノ構造の極微細な構造を少し変えるだけで光応答性や共鳴モードが大きく変わることがプラズモニック構造体の醍醐味と言える。それだけに計算精度や構造の詳細を入念に検討する必要があり、大量の数値計算が必要となる。プラズモニック構造体を電子素子などと組み合わせるとさらに大きな計算となり、それらが今後の対象となっていくと考えている。

謝辞

本研究における計算コードの並列化チューニングは東北大学サイバーサイエンスセンターの助力を得て行うことができました。MPI 化の実装は SX-9 開発元 NEC のご協力を得て、東北大学サイバーサイエンスセンターと共同で実施したものであり、関係各位にこの場を借りて厚くお礼を申し上げます。また、本研究の一部は科学技術振興機構さきがけの支援を受けて行われました。

参考文献

- [1] L. Li, “New formulation of the Fourier modal method for crossed surface-relief gratings,” *J. Opt. Soc. Am. A* **14** (10), 2758–2767 (1997).
- [2] L. Li, “Formation and comparison of two recursive matrix algorithm for modeling layered diffraction gratings,” *J. Opt. Soc. Am. A* **13** (5), 1024–1035 (1996).
- [3] H. Hertz, *Electric Waves*, translated ed. (Dover, New York, 1962).
- [4] 岩長祐伸, 「散乱行列法を用いたフォトニック結晶の光学応答解析」 *SENAC* **39** (3), 25–32 (2006).
- [5] 岩長祐伸, 「メタマテリアルにおける有効光学定数の決定法と応用」 *SENAC* **40** (3), 5–14 (2007).
- [6] 岩長祐伸, 「遺伝アルゴリズムを用いた光機能性人工構造体の探索」 *SENAC* **41** (3), 43–51 (2008).
- [7] 岩長祐伸, 「メゾ周期構造体における電磁波散乱の高精度数値計算」 *SENAC* **42** (4), 9–18 (2009).
- [8] 岩長祐伸, 「積層プラズモニック結晶における光機能性発現」 *SENAC* **44** (2), 49–56 (2011).
- [9] 岩長祐伸, 「金属ナノ構造を含む一般フォトニック結晶の光学応答計算コード MPI 化による高速化」 *SENAC* **45** (3), 9–16 (2012).
- [10] A. D. Rakic, A. B. Djurišić, J. M. Elazar, and M. L. Majewski, “Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices,” *Appl. Opt.* **37** (22), 5271–5283 (1998).
- [11] COMSOL Multiphysics, <http://www.comsol.com>
- [12] S. Zhang, W. Fan, N. C. Panoiu, K. J. Malloy, R. M. Osgood, and S. R. J. Brueck, “Experimental Demonstration of Near-Infrared Negative-Index Metamaterials,” *Phys. Rev. Lett.* **95** (13), 137404 (2005).
- [13] M. Iwanaga, “First-principle analysis for electromagnetic eigen modes in an optical metamaterial slab,” *Prog. Electromagn. Res.* **132**, 129–148 (2012).
- [14] M. Iwanaga, “Photonic metamaterials: a new class of materials for manipulating light waves,” *Sci. Technol. Adv. Mater.* **13** (5), 053002 (2012).