

[共同研究成果]

積層プラズモニック結晶における光機能性発現

岩長 祐伸

物質・材料研究機構、科学技術振興機構さきがけ

近年、世界的に盛んに研究されているプラズモニクスにおける数値計算は次第に大規模化してきている。今回、プラズモニック結晶、すなわち金属のメゾスコピック（メゾ）スケール周期構造体における光学応答の研究を通じて、プラズモニック結晶の光機能性を明らかにし、極小空間スケールでの光波操作が可能になることを見いだした。その際に対象を積層することで3次元化することが必須であり、そのため数値計算においては使用メモリとCPU時間がさらに増大する。本稿では、積層プラズモニック結晶による光波操作の数値計算例とスーパーコンピュータ SX-9 上での高速化の現状について述べる。

1. はじめに

プラズモニクスにおける光科学は金属のナノ、メゾ構造体におけるプラズモン共鳴や負の屈折など新規な光波伝播操作を主な対象とする。また、それらの特徴的なプラズモニック場と生体分子などの相互作用もプラズモニクス研究の範疇に入り、世界中で研究が行われている。1970年代以降、プラズモン共鳴には顕著な電場増強効果があることが知られているので、一分子の微弱な振動情報などを得ることが期待され、新たなセンシング技術の基盤となることを目指す研究も数多く行われている。

2005年以降、筆者は東北大学サイバーサイエンスセンターと共同研究を行い、光の波長同程度以下の周期長をもつ周期構造体（フォトニック結晶）の線形光学応答（反射率、透過率、回折効率、光吸収率）を高精度に数値計算してきた [1-4]。その内容は1次元周期系に始まり [1]、メタマテリアルと呼ばれる光の波長より周期長が小さい構造体への適用 [2]、遺伝アルゴリズムとの組合せによる未踏な機能性構造の探索 [3]、2次元系の大規模数値計算に至っている [4]。いずれも周期的構造体の光学応答を数値的に計算することを基本としていて、フォトニック結晶、メタマテリアルなどを対象としてきた。

今回、プラズモニック結晶に関する結果について述べる。プラズモニック結晶は純粋に構造の観点からいえば、金属フォトニック結晶である。しかしながら、起こる現象の特徴が明示的でないので、プラズモン共鳴が物理現象の根底にあるという意味を強調するためにプラズモニック結晶と呼ぶことにする。本稿で述べる具体例として、積層することによって3次元化したプラズモニック結晶について述べ、積層化によって著しく向上する偏光操作の結果について述べる。

第2節では実施した数値計算法の概要について述べる。第3節では積層プラズモニック結晶の数値計算の実例と計算上必要になるメモリなどについても言及し、SX-9での動作の現状などについて述べる。

2. 3次元的積層構造における線形光学応答の数値計算

周期的構造体の3次元化は2次元的層状構造を積層することによって実現する。図1(a)は模式的に3層からなる積層構造を示している。層状の周期構造は xy 面に平行であるように配置し、面内に無限に広がっているとして、 z 軸方向に積層しているとする。また、3層積層の例では z 軸正

のほうから順に上層、中層、下層と呼ぶことにする。図中では点線で示した単位胞から上中下層を切り出して示している。灰色部分が金属、水色部分が透明誘電体であることを想定している。光は手前側から平面波を照射する配置を考え、透過率、反射率の数値計算を実施する。同時に回折効率、光吸収率も算出する。実際の実験では、図 1(a)のように積層構造は基板上に作製される場合が多く、 xy 面内の周期構造は照射する光のスポットよりも大きければ、数値計算と直接対比できる。

図 1(b)は積層周期構造の xz 断面を示しており、図 1(a)中の青色点線位置で断面をとったものである。上層と下層の金属部分に着目すると、構造として相補的であることが分かる。このような構造を相補的積層構造と呼ぶことにしよう。中層は上下層間のスペーサーとしての役割を担うことになる。

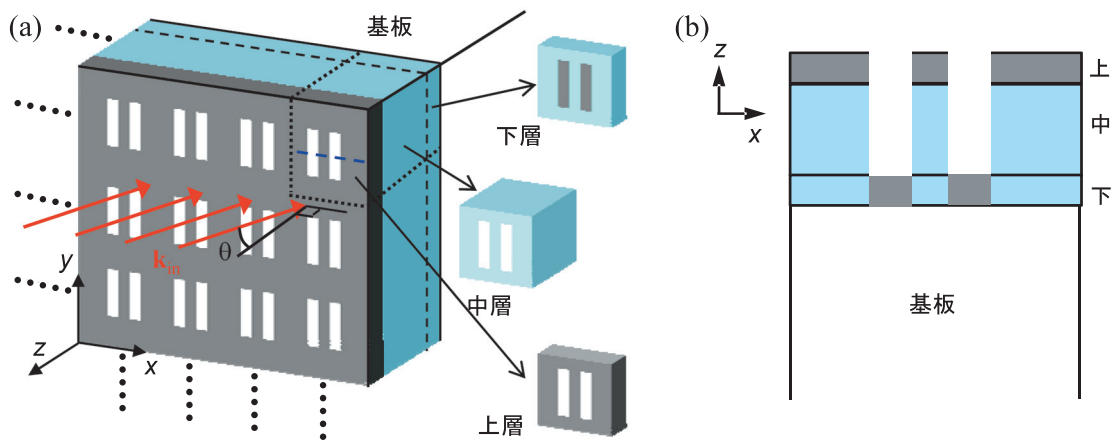


図 1 (a) 積層構造の模式図。周期層が z 軸正のほうから順に上中下層が積層している。(b) 積層構造の xz 面内の断面図。(a)中の青色点線の位置における断面。

つぎに 3 次元化した周期構造体の線形光学応答を算出するアルゴリズムの概要について述べる。基本的な方針は図 2 に示すように、まず各周期層の固有電磁波モードを求め、それらを散乱行列アルゴリズムで接続して、積層構造全体による線形光学応答を算出することになる。この方法は電磁気学の基礎方程式であるマクスウェル方程式を数値的に高精度に解く方法であり、電磁気学における第一原理計算に相当する。図 1 に例示した構造に対して、解析解は存在しないので、上記の方針にしたがって数値的に線形光学応答を算出することが最も信頼できる方法である。

図 2 では 3 周期層からなる積層構造を例に線形光学応答を数値計算するアルゴリズムについて示している。勿論、任意に M 層積層した場合も同様に扱うことができる。図 2 の下のように層に番号付けしたとき、入射層 0 から基板層 4 までの各層に対してマクスウェル方程式をフーリエ変換した方程式①を構成して解くことが最初のステップである [5]。図 2 中の方程式①は層 i における電場をフーリエ展開した係数 $\langle E_x^{(i)} \rangle$ 、 $\langle E_y^{(i)} \rangle$ を変数としている。行列 F 、 G の具体的な表式は文献 [4] にも詳述したので繰り返さないが、層に含まれる構成物質の誘電率が構造情報をすべて含んだ形で取り込まれている。また、電場のフーリエ係数は構造の周期長を d とするとき、振動子 $\exp\left[2\pi\sqrt{-1}(lx+ny)/d\right]$ を使って次数 l, n を $l, n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm N$ のように最大 N 次まで

展開したときに生じる係数である。固有値 γ が z 軸方向の電磁波固有モードを特徴づける。各固有モードの z 方向の分布は $\exp(\sqrt{-1}\gamma_k^{(i)}z)$ で表される。一般に固有値 $\gamma_k^{(i)}$ は複素数であり、虚数部が 0 でない場合、指数関数的減衰成分を含むので、近接場光を表すことになる。透過光、反射光、回折光は遠隔場光であるから、固有値 $\gamma_k^{(i)}$ は虚部が 0 である純実数である。

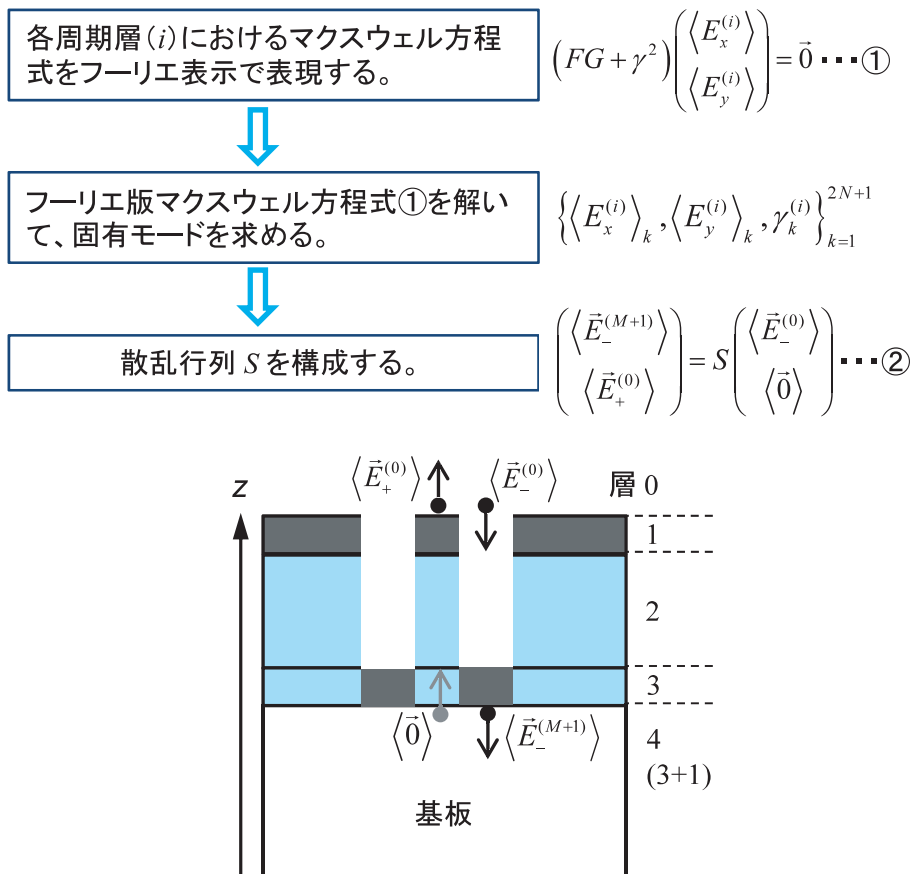


図2 積層した周期構造体の線形光学応答を求めるアルゴリズムの概要。方程式①が各層 i の固有モードを決める固有値方程式。最終的に散乱行列 S を構成して関係式②によって、入射波 $\langle \bar{E}_-^{(0)} \rangle$ から透過波 $\langle \bar{E}_-^{(M+1)} \rangle$ 、反射波 $\langle \bar{E}_+^{(0)} \rangle$ を算出する。図中では、3層積層 ($M=3$) を例に示している。

層 i における固有モードの固有ベクトルの組 $\left\{ \langle E_x^{(i)} \rangle_k, \langle E_y^{(i)} \rangle_k \right\}_{k=1}^{2N+1}$ をまとめて、ひとつの状態ベクトルとして $\langle \bar{E}_\pm^{(i)} \rangle$ と表すことにする。下付の \pm は電磁波の伝播方向が z 軸に対して正負のいずれであるかを明示的に示している。入射波に対応する状態ベクトルは $\langle \bar{E}_-^{(0)} \rangle$ で表される。入射波は平面波であるから、0 でない成分は高々2成分である。一方、透過波に対応する状態ベクトル

$\langle \vec{E}_-^{(4)} \rangle$ はいわゆる透過光のほかに透過方向に放射される回折光と近接場光の電場成分のフーリエ係数をすべて含んでいる。これらの状態ベクトルは $2(2N+1)^2$ 成分のベクトルであり、実際のプラズモニック結晶に対する数値計算では $N \geq 17$ を使用するから数千成分をもつベクトルになる。 $N=17$ である場合、状態ベクトルは 2450 成分をもつ。同様に反射波の状態ベクトルは $\langle \vec{E}_+^{(0)} \rangle$ と表される。

目的の線形光学応答を算出するためには、入力（入射波）から出力（透過波、反射波）を求める式を得なければならない。この関係式は散乱行列 S を構成することによって得られる。図 2 中の式②で示すように入射波の状態ベクトルと透過波、反射波の状態ベクトルを結びつける。層間の境界条件と各層内の電磁波の転送因子 $\exp(\sqrt{-1}\gamma_k^{(i)}z)$ を使って、入射波と反射波の組を透過波と結びつける枠組みは転送行列法としてよく知られており、直観的に理解しやすい [6]。散乱行列法は入射波を透過波と反射波との組に結びつける方法である [7]。両者は数学的には等価であるが、転送行列から散乱行列を導く過程は単純ではないが可能であり、その手順はすでに知られている [7] ので、ここでは割愛する。また、散乱行列法の利点は文献 [1] にも述べたことがあり、数値的な安定性の面で優れている。

散乱行列 S を用いた最終的な関係式②は状態ベクトルの組が $4(2N+1)^2$ 成分を有するから、散乱行列は $4(2N+1)^2 \times 4(2N+1)^2$ 成分からなる大きな行列になる。 $N=17$ である場合、 S 行列は複素数値の 2450×2450 一般行列である。実際の数値計算では多くの場合でこれ以上の大きさの S 行列を構成して線形光学応答を算出することになる。次節では実例について述べる。

3. 数値計算の実例

3.1 プラズモニック偏光子

ここでは相補的積層構造で発現する光機能性に関して一つの具体例を述べる。この例は相補的積層構造では透過率も偏光選択性が劇的に向上することを示す。

図 3(a)は相補的積層構造の単位胞を示しており、長方形の空気孔が 2 つ空いているとする。以降、この単位胞を II 型と呼ぶことにする。図 1(a)に示したように上中下層の 3 層が積層していて、上層と下層の金属が構造的に相補的であるとする。図 3 では比較として単層構造の場合もあわせて示す。図 3 の例では金属は銀とする。数値計算の実行時において銀の誘電率は文献 [8] に集約されている実験値を用いた。一方、誘電体は実験で使用する有機物質を想定して誘電率 2.40 とする。なお、現実の実験を考慮すると、相補的積層構造は試料のナノ加工の工程が簡素化できるという利点がある [9,10]。

単位胞の構造パラメータについて述べると、 xy 面内の大きさは $1000 \times 1000 \text{ nm}^2$ である。空気孔は長方形でそれぞれ縦 500 nm、横 150 nm で、2 つの空気孔は 100 nm 離れて y 軸に平行に配置されているものとする。厚さに関しては、上中下層の厚さがそれぞれ 50、150、50 nm である。したがって、積層構造全体の厚さは 250 nm であり、金属部分の厚さは 50 nm である。

図 3(c)は垂直入射下での図 3(a)の相補的積層構造の透過スペクトルを示していて、入射平面波

の電場ベクトルが x 軸に平行な x 偏光下での透過スペクトルを青線で示している。同様に y 偏光下での透過スペクトルを破線で示している。透過スペクトルの比較から、 x 偏光のときに透過率 T_x が大きいことは明白であり、 y 偏光の透過スペクトルは近赤外光の波長域で 0% に近い値をとっている。透過率の偏光選択性を定量的に評価するために図 3(e) に x 偏光と y 偏光での透過率の比 ($T_x \div T_y$) を示している。 x 偏光の透過率のピークは 1650 nm 付近にあり、透過率の比は 10^4 を超える。この値は市販のプリズム偏光子に比肩し、その性能を厚さ 250 nm、つまり波長の 6.6 分の 1 で達成している点の特筆しなければならない。プリズム偏光子は数 cm に厚さであるから、偏光子の極小化がプラズモニック偏光子で実現できることを示している。

図 3(d)、3(f) は単層構造 (相補的積層構造の上層のみからなる層構造) における垂直入射下の透過スペクトルと透過率の比を示している。透過率に関する偏光依存性は相補的積層構造の場合と定性的に同じ傾向にある。しかし定量的には、透過率の比から明らかなように単層構造における偏光選択比は 1000 倍程度小さい。つまり、偏光子として単層構造は性能が劣り、相補的積層構造では偏光子としての性能が劇的に向上することを示している。

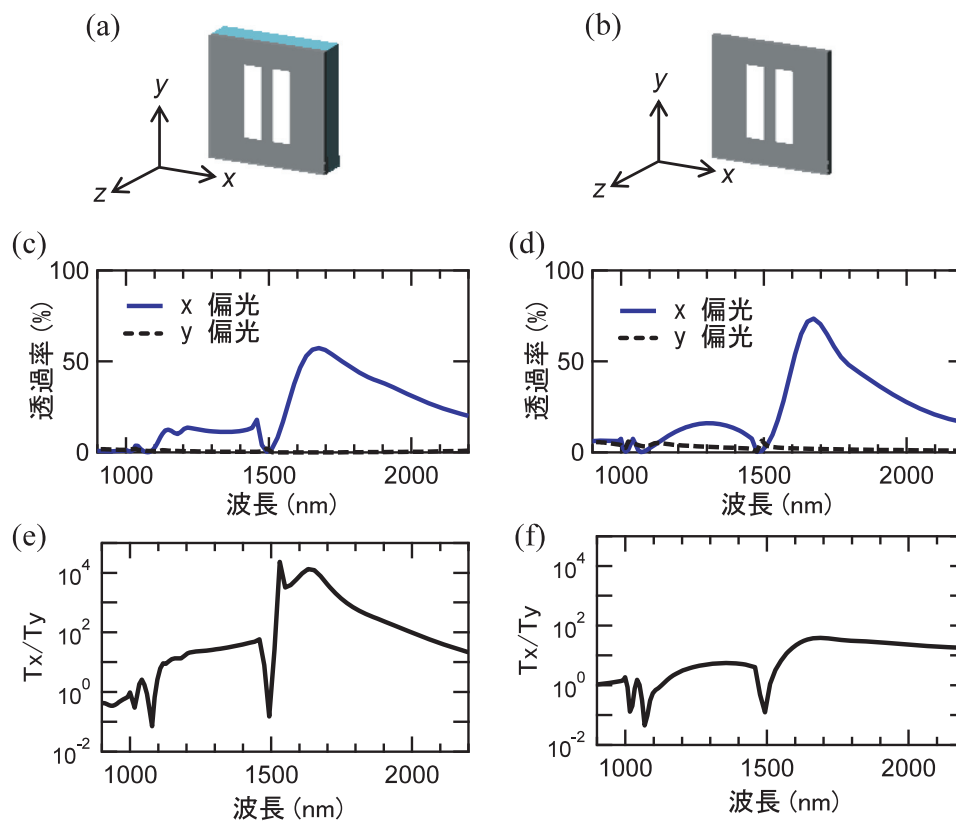


図 3 II 型の単位胞模式図 (基板は省略している) : (a) 相補的積層構造、(b) 金属膜に空気孔があいた単層構造。周期長は x, y 方向いずれも 1000 nm。偏光透過スペクトル、青色実線は x 偏光下の透過率 T_x 、黒色破線は y 偏光下の透過率 T_y : (c) 相補的積層構造、(d) 単層構造。透過率の比 : (e) 相補的積層構造、(f) 単層構造。

表 1 では相補的積層構造、単層構造におけるいくつかの特徴的な波長での透過率の比などをまとめて示している。相補的積層構造の透過率の比のピーク波長が 1530.2、1630.9 nm、透過率ピーク波長が 1650.0 nm である。相補的積層構造において単層構造の 1000 倍以上の透過率の比の向上が確認できる。

構造	波長 (nm)	T_x (%)	T_y (%)	T_x/T_y
相補的積層構造	1530.2	8.0	3.5×10^{-4}	2.3×10^4
相補的積層構造	1630.9	52.9	4.0×10^{-3}	1.3×10^4
相補的積層構造	1650.0	55.0	6.0×10^{-3}	9.2×10^3
単層構造	1530.2	9.6	3.0	3.2
単層構造	1630.9	65.0	2.1	31
単層構造	1650.0	70.0	2.0	35

表 1 相補的積層構造と単層構造の比較。透過率の値は図 3(c)、3(d)から採取した。

表 1 に示したような透過率のピークと大きな透過率の比は局在プラズモン共鳴によって起こっていることがこれまでに明らかになっている [11,12]。物理現象として詳細な研究を行うには電磁場分布を数値計算するなどさらなる研究が必要であったが、本稿で述べている計算法とはまた別の方法を用いることになる。なぜなら、散乱行列法は電磁波の転送因子 $\exp(\sqrt{-1}\gamma_k^{(i)}z)$ で発散項が現れないように巧みにアルゴリズムが構成されているが、電磁場分布を空間の各点で求めようとするとコード上での発散項の処理が極めて困難になるからである。したがって電磁場分布の数値計算に関しては有限要素法など空間分割に特化した方法が適している。

3.2 計算実行時間、メモリについて

この小節では、積層構造をもつプラズモニック結晶において図 3 で示したような結果を得るために必要な計算時間やメモリなどの実行時の条件について述べる。

サイバーサイエンスセンターとの共同研究を通じて、 S 行列を構成するまでの多数の行列構成における並列化を進めた結果、未実行時と比べて 15 倍の高速化を達成することができた。これによって実用的な実行時間でスペクトル計算ができるようになった。典型的には、相補的積層構造では振動子の最大次数 $N=17$ に設定して、図 3 のスペクトルを得るにはジョブクラス p16 上での実行によって 15 時間程度かかる。計算のデータ点は 100 点程度あるから、1 点あたり数分の計算時間がかかることになる。もしも上記の高速化ができていなければ、15 倍の時間がかかり、 $15 \times 15=225$ 時間と 10 日近い実行時間がかかる。これではごく小数の計算しか実行できず、研究の質を高く保つことは困難である。つまり、実用に耐えない事態に陥る。以上のように、コード並列化の改良に成功したことは大きな成果であった。

メモリに関して述べると、図 3 において計算精度は各点の透過率の値に対して $\pm 1\%$ 程度である

と見積もることができ、精度が良く出ている研究例となっている。振動子の最大次数 $N=17$ と比較的小さめにとるとき、使用メモリは 20 GB 程度と大きくはない。この N に対して約 2 乗に比例して増大するので、 $N=41$ とすると、使用メモリは 100 GB 程度に達する。また、使用メモリは単位胞構造の複雑さに大きく依存し、より複雑な構造を計算した例では $N=17$ でも 50 GB を超える場合もある。また、積層数におおむね比例して使用メモリが増大するので、10 層構造では 150 GB 程度に達する。以上を総合すると、計算対象の一般性を担保しながら、精度を求めて計算を実行するためには、300 GB のメモリは担保したい。これだけのメモリを使う計算はスーパーコンピュータで行う必要がある。

メモリだけみれば、並列クラスターコンピュータでも実施できると考えられるが、筆者の経験では計算速度が 30 倍遅くなるなど、運用に行き詰まった。SX-9 上での運用が現状では最良の選択肢であると考えている。

たびたび SENAC 上で述べてきた [1-4] ので手短かに述べるが、固有値・固有ベクトルを求める ASL 関数だけは並列化できず、さらなる高速化の唯一の障害となっている。今後、スペクトル計算時のループを MPI 化するなどの改良を行うことが必要と考えている。

4. まとめ

積層した 3 次元的プラズモニク結晶の線形光学応答を数値計算して、積層したことによる光機能性の向上を示した。今回示した例は光の波長よりも薄い、極小かつ高性能なプラズモニク偏光子であったが、偏光回転素子など新規な光学素子もこれまでに見いだしている [13]。

計算対象が高度化するにつれて、単位胞構造の複雑化、3 次元化は必然の流れであり、SX-9 の性能が生かされてくる状況が多々現れてきている。今度、一層の材料、構造の多様化により、極小で光機能性に富む新規な素子の設計開発に大規模数値計算を活用していきたい。

謝辞

本研究で用いたコードは東北大学サイバーサイエンスセンターの職員の方々のご支援によって並列化率が向上し、大幅な高速化が実現できた。ここに謝意を表すと同時に、東日本大震災の困難を乗り越えてセンターの活動が今後も維持されることを切に願ってやまない。

この研究の一部は科学研究費補助金 (No. 22760047) によって支援されたことを付記する。

参考文献

- [1] 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).
- [2] 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).
- [3] 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).
- [4] 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).
- [5] L. Li, "New formulation of the Fourier modal method for crossed surface-relief gratings," J. Opt. Soc. Am. A **14**(10), 2758-2767 (1997).
- [6] For example, P. Markoš and C. M. Soukoulis, *Wave Propagation from Electrons to Photonic Crystals and Left-handed Materials* (Princeton Univ. Press, 2008).
- [7] 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).
- [8] A. D. Rakíc, 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).

- [9] M. Iwanaga, “Polarization-selective transmission in stacked two-dimensional complementary plasmonic crystal slabs,” *Appl. Phys. Lett.* **96**(8), 083106 (2010).
- [10] M. Iwanaga, “A new class of plasmonic crystals: the eigen modes, field enhancement, and applications,” *Proc. SPIE* **7496**, 74961I (2011).
- [11] M. Iwanaga, “Subwavelength electromagnetic dynamics in stacked complementary plasmonic crystal slabs,” *Opt. Express* **18**(15), 15389–15398 (2010).
- [12] M. Iwanaga, “Electromagnetic eigenmodes in a stacked complementary plasmonic crystal slabs,” *Phys. Rev. B* **82**(15), 155402 (2010).
- [13] M. Iwanaga, “Subwavelength orthogonal polarization rotator,” *Opt. Lett.* **35**(2), 109–111 (2010).