(110) 光波工学

非理想型多層構造を伴う微細周期構造による構造色の数値解析
Numerical Analysis of Structural Color by Subwavelength Periodic Structure with Non-ideal Multilayer Type

丸山 岳人　若林 秀昭　荒井 剛　稲井 寛
Taketo Maruyama　Hideaki Wakabayashi　Tsuyoshi Arai　Hiroshi Inai
岡山県立大学大学院　情報系工学研究科　システム工学専攻

1　はじめに

構造色とは微細な構造によって光が回折，干渉，屈折，散乱することにより発色する現象である．紫外線で色が劣化しない，顔料や染料では表現できない金属光沢があるなどの特徴があり，工業分野で有用と考えられる．自然界では昆虫や魚類，鳥類の一部などに見られる．図 1 に示すルリスズメダイ [1] の体表は青色であるが、体内に色素は含まれない．ルリスズメダイの体表の電子顕微鏡写真によると屈折率の異なる 2 種類の物質が多層に積層し，横方向に周期構造を有することがわかる．

図 1: ルリスズメダイ ([1] より引用)

ルリスズメダイに観察される色はこの多層構造を伴う微細周期構造によるものであるということが光計測によってわかっている．しかし，色彩学的視点を考慮して数値解析により検討した報告は無いようである．そこで本研究では非理想型の多層構造を伴う構造色の代表的な例であるルリスズメダイの体表が反射小板と細胞質が多層に積層している微細周期構造になっていることに着目し数値解析及び検討を行う．

2　問題の設定

体表の上方を海水とし，図 2 のように波長 λ の平面波入射を考え x 軸負方向からの入射角を θ，y 軸正方向からの方位角を ϕ，偏波角を γ とする．

多層構造中には格子周期 Λ の誘電体格子が Np 層存在する．入射波領域 0，基盤領域 N の媒質定数はそれぞれ (ε_0, μ_0)，(ε_s, μ_s) とする．

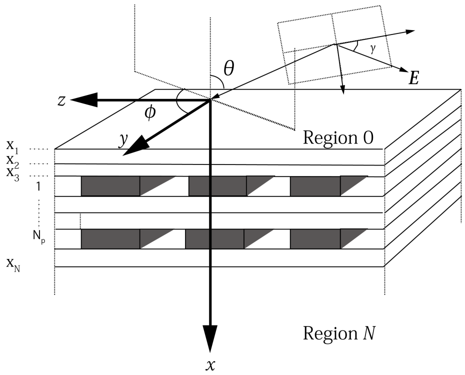

図 2: 3 次元入射図

3　解析理論

周期構造モデルを数値解析するにあたり行列固有値法を用いる [2]．本節ではこの行列固有値法について述べる．

空間デカルト座標 (x, y, z) を波数 k_0 により、$k_0x\to x$, $k_0y\to y$，$k_0z\to z$ のように規格化された空間座標に対する (計算機向けにディメンジョンレス化した) マクスウェルの方程式を考えると以下のようになる．

$$\begin{aligned}\overline{\mathrm{curl}}\sqrt{Y_0}\boldsymbol{E} &= -j[\mu]\sqrt{Z_0}\boldsymbol{H}\\ \overline{\mathrm{curl}}\sqrt{Z_0}\boldsymbol{H} &= -j[\varepsilon]\sqrt{Y_0}\boldsymbol{E}\end{aligned}\tag{1}$$

$\overline{\mathrm{curl}}$ は k_0 で空間変数が規格化された rot を表す．等方性周期媒質を考え，比誘電率テンソル，比透磁率テンソルを $[\varepsilon] = \mathrm{diag}[\varepsilon(z)]$，$[\mu] = \mathrm{diag}[\mu(z)]$ のように表す．構造の周期性から電磁界の x, y, z 成分 E_i，H_i は $e_{im}(x)$，$h_{im}(x)(i = x, y, z)$ を展開係数とする展開高調波によって

$$\sqrt{Y_0}E_i(x,y,z) = \sum_{m=-M}^{M} e_{im}(x)\exp\{-j(q_0y+s_mz)\}\tag{2}$$

$$\sqrt{Z_0}H_i(x,y,z) = \sum_{m=-M}^{M} h_{im}(x)\exp\{-j(q_0y+s_mz)\}\tag{3}$$

$$s_m = s_0 + ms,\quad s = \frac{\lambda}{\Lambda},\quad s_0 = \sqrt{\varepsilon_0\mu_0}\sin\theta\sin\phi\tag{4}$$

$$q_0 = \sqrt{\varepsilon_0\mu_0}\sin\theta\cos\phi\tag{5}$$

のように展開する．媒質定数は，媒質の周期性により打ち切り次数 N_f によって次式のようにフーリエ展開できる．式 7

$$\tilde{\varsigma}(z) = \sum_{m=-N_f}^{N_f} \tilde{\varsigma}_m \exp\left\{jm\left(\frac{\lambda}{\Lambda}\right)z\right\} \tag{6}$$

$$\tilde{\varsigma}_m = \int_{-\Lambda/2}^{\Lambda/2} \varsigma(z) \exp\left\{-jm\left(\frac{\lambda}{\Lambda}\right)z\right\} dz \tag{7}$$

但し，$\tilde{\varsigma} = \varepsilon, \mu,\ 1/\varepsilon,\ 1/\mu$ である．電磁界の y, z 成分について整理すると 1 階微分方程式は以下のようになる．

$$\frac{d}{dx}F(x) = j[C]F(x), \quad F(x) = \begin{bmatrix} \boldsymbol{e}_y(x) \\ \boldsymbol{e}_z(x) \\ \boldsymbol{h}_y(x) \\ \boldsymbol{h}_z(x) \end{bmatrix} \tag{8}$$

$$[C] = \begin{bmatrix} [0] & [0] & -[q][s][\varepsilon]^{-1} & [q][\varepsilon]^{-1}[q] - [1/\mu]^{-1} \\ [0] & [0] & [\mu] - [s][\varepsilon]^{-1}[s] & [s][\varepsilon]^{-1}[q] \\ [q][\mu]^{-1}[s] & [\varepsilon]^{-1} - [q][\mu]^{-1}[q] & [0] & [0] \\ [s][\mu]^{-1}[s] - [\varepsilon] & -[s][\mu]^{-1}[q] & [0] & [0] \end{bmatrix} \tag{9}$$

但し，$[q] = q_0[\delta_{mn}]$，$[s_m] = [\delta_{mn}s_m]$ である．ここでは微分方程式の解法として，係数行列 $[C]$ の行列固有値問題に帰着する方法を用いる．$4(2M+1)$ 次元の回折波振幅ベクトル $[\boldsymbol{g}]$ と変換行列 $[\boldsymbol{T}]$ を用いて電磁界成分を

$$\boldsymbol{F}(x) = [\boldsymbol{T}]\boldsymbol{g}(x) = [\boldsymbol{T}][\boldsymbol{g}^{+}(x) \quad \boldsymbol{g}^{-}(x)]^T \tag{10}$$

のようにに変換すれば，微分方程式は

$$[\boldsymbol{T}]^{-1}[\boldsymbol{C}][\boldsymbol{T}] = [\boldsymbol{Q}], \quad \frac{d}{dx}\boldsymbol{g}(x) = j[\boldsymbol{Q}]\boldsymbol{g}(x) \tag{11}$$

のように与えられ，$[\boldsymbol{C}]$ の相似変換行列 $[\boldsymbol{Q}]$ は対角行列であり，数値的に求めた $4(2M+1)$ 次元の固有値 $\kappa_p^{\pm}(p = 1,\ 2,\ \cdots,\ 2(2M+1))$ からなる．$[\boldsymbol{T}]$ は固有値ベクトル行列であり，周期構造領域では固有値に対して数値的に求められる．式 (13) を解けば電磁界成分は次式のように求められる．

$$\begin{bmatrix} \boldsymbol{e}_y(x) \\ \boldsymbol{e}_z(x) \\ \boldsymbol{h}_y(x) \\ \boldsymbol{h}_z(x) \end{bmatrix} = [\boldsymbol{T}][\boldsymbol{P}(x)] \begin{bmatrix} \boldsymbol{g}^{+}(\dot{x}) \\ \boldsymbol{g}^{-}(\ddot{x}) \end{bmatrix}$$
$$[\boldsymbol{P}(x)] = \begin{bmatrix} [\delta_{pq}\exp\{j\kappa_p^{+}(x-\dot{x})\}] & [0] \\ [0] & [\delta_{pq}\exp\{j\kappa_p^{-}(x-\ddot{x})\}] \end{bmatrix} \tag{12}$$

となる．$\dot{x}, \ddot{x}$ は位相基準点を表す．以下のように行列 $[\boldsymbol{A}_n]$，$[\boldsymbol{B}_n]$ を準備する．

$$[\boldsymbol{A}_n] = [\boldsymbol{T}_{n-1}][\boldsymbol{P}_{n-1}(x_n)], \quad [\boldsymbol{B}_n] = [\boldsymbol{T}_n][\boldsymbol{P}_n(x_{n+1})] \tag{13}$$

これらを用いて 第 1〜N 境界面 $(x = x_1, x_2 \cdots x_N)$ における境界条件は次の様に表せる．

$$\begin{aligned} &[\boldsymbol{A}_1]\begin{bmatrix} \boldsymbol{0} \\ \boldsymbol{g}_0^{-} \end{bmatrix} - [\boldsymbol{B}_1]\begin{bmatrix} \boldsymbol{g}_1^{+} \\ \boldsymbol{g}_1^{-} \end{bmatrix} = -[\boldsymbol{A}_1]\begin{bmatrix} \boldsymbol{g}_0^{+} \\ \boldsymbol{0} \end{bmatrix} \quad (x = x_1) \\ &[\boldsymbol{A}_n]\begin{bmatrix} \boldsymbol{g}_{n-1}^{+} \\ \boldsymbol{g}_{n-1}^{-} \end{bmatrix} - [\boldsymbol{B}_n]\begin{bmatrix} \boldsymbol{g}_n^{+} \\ \boldsymbol{g}_n^{-} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{0} \\ \boldsymbol{0} \end{bmatrix} \quad (x = x_n) \\ &[\boldsymbol{A}_N]\begin{bmatrix} \boldsymbol{g}_{N-1}^{+} \\ \boldsymbol{g}_{N-1}^{-} \end{bmatrix} - [\boldsymbol{B}_n]\begin{bmatrix} \boldsymbol{g}_N^{+} \\ \boldsymbol{0} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{0} \\ \boldsymbol{0} \end{bmatrix} \quad (x = x_N) \end{aligned} \tag{14}$$

未知数は領域 0 の $\boldsymbol{g}_0^{-}(x_1)$，領域 N の $\boldsymbol{g}_N^{+}(x_N)$ であり，

$$\begin{aligned} \boldsymbol{g}_0^{-} &= [\ {}^{E}\boldsymbol{g}^{a-} \quad {}^{M}\boldsymbol{g}^{a-}\ ]^T \\ \boldsymbol{g}_N^{+} &= [\ {}^{E}\boldsymbol{g}^{s+} \quad {}^{M}\boldsymbol{g}^{s+}\ ]^T \end{aligned} \tag{15}$$

となる．TE 波入射，TM 波入射はそれぞれ次式のように表される．

$$\begin{aligned} &\boldsymbol{g}_0^{+} = \left[0\cdots0 \quad {}^{E}g_0^{a+} \quad 0\cdots\cdots0 \quad {}^{M}g_0^{a+} \quad 0\cdots0\right]^T \\ &\left({}^{E}g_0^{a+}, {}^{M}g_0^{a+}\right) = \begin{cases} (1,0) & \text{TE 波} \\ (0,1) & \text{TM 波} \end{cases} \end{aligned} \tag{16}$$

TE 波成分，TM 波成分の m 次の反射回折効率と透過回折効率は，

$$\begin{aligned} &{}^{E}\eta_m^r = \frac{Re[\xi_m^a]|{}^{E}g_m^{a-}|^2}{P_{in}}, \quad {}^{M}\eta_m^r = \frac{Re[\xi_m^a]|{}^{M}g_m^{a-}|^2}{P_{in}}, \\ &{}^{E}\eta_m^t = \frac{Re[\xi_m^s]|{}^{E}g_m^{s+}|^2}{P_{in}}, \quad {}^{M}\eta_m^t = \frac{Re[\xi_m^s]|{}^{M}g_m^{s+}|^2}{P_{in}} \\ &P_{in} = Re[\xi_0^a]|{}^{E}g_0^{a+}|^2 + Re[\xi_0^a]|{}^{M}g_0^{a+}|^2 \end{aligned} \tag{17}$$

のように与えられる．自然光は無偏光であるから，TE 波入射と TM 波入射の反射率の平均値

$${}^{U}\eta_m^r(\lambda) = \frac{\eta_m^r(0^\circ) + \eta_m^r(90^\circ)}{2}, \quad \eta_m^r(\gamma) = {}^{E}\eta_m^r + {}^{M}\eta_m^r \tag{18}$$

が発色表現には必要である．

4 表色方法

本節では，鏡面反射方向から観察した色を表記する方法を述べる．等色関数の値は実験結果をもとにした値であり，文献 [3] の数値を採用する．分光分布を 1 とし，照明に無関係の表面色とすれば，3 刺激値 X, Y, Z は等色関数 $\overline{x}(\lambda), \overline{y}(\lambda), \overline{z}(\lambda)$ と反射率 ${}^{U}\eta_0^r(\lambda)$ を用いて次式のように定義することができる．

$$\begin{aligned} &\begin{bmatrix} X \\ Y \\ Z \end{bmatrix} = K\sum_{i=0}^{n} {}^{U}\eta_0^r(\lambda_i) \begin{bmatrix} \overline{x}(\lambda_i) \\ \overline{y}(\lambda_i) \\ \overline{z}(\lambda_i) \end{bmatrix} \\ &K = \frac{1}{\sum_{i=0}^{n} \overline{y}(\lambda_i)} \end{aligned} \tag{19}$$

ここで定数 K は全反射の時，Y 値が 1 になるように正規化している．$\lambda_i (i = 1, \cdots, n, \lambda_1 = 360, \lambda_n = 830[\mathrm{nm}])$ は波長間隔 $\Delta\lambda$ によって定まる離散的な波長点を表している．次に，XYZ 表色系の 3 刺激値から sRGB 表色系の 3 刺激値 R, G, B は次式のように変換行列 [3] により求められる．

$$\begin{bmatrix} R \\ G \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 3.2406 & -1.5372 & -0.4986 \\ -0.9686 & 1.8758 & 0.0415 \\ 0.0557 & -0.2040 & 1.0570 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} X \\ Y \\ Z \end{bmatrix} \tag{20}$$

さらに，ガンマ補正を施し，0〜255 に規格化し，sRGB 表色系を用いて色を表記する．sRGB 表色系による表色は識別しやすいが，自然界の色は，sRGB 表色系の色域では表現出来ない色が存在するため，全ての色を扱うことができる Yxy 表色系における色度座標 (x, y) を次式のように求める．

$$x = \frac{X}{X+Y+Z}, \quad y = \frac{Y}{X+Y+Z} \tag{21}$$

5 数値計算及び検討

図 3 にルリスズメダイの体表を元にモデル化した解析する構造を示す．これは膜の厚さをそれぞれ d_c，d_r とする非理想型の多層膜である (付録参照)．

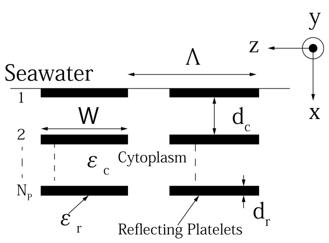

図 3: 反射小板と細胞質による多層周期構造モデル

数値計算に用いた構造のパラメータは反射小板の体積占有率 $W/\Lambda = 0.9$，反射小板の枚数 $N_p = 50$，反射小板の屈折率 $\sqrt{\varepsilon_r} = 1.83$，細胞質の屈折率 $\sqrt{\varepsilon_c} = 1.37$，周囲の屈折率は海水であると想定して屈折率 1.35，反射小板の間隔 $d_c = 165[nm]$，厚さ $d_r = 5[nm]$ とした [4]．x 軸負方向からの入射角 θ，y 軸正方向からの方位角 ϕ，波長 λ の平面波が入射するものとする．

θ を固定し，ϕ を 0°〜90° まで変パラメータを変えた．これらを共通の条件として、入射角 θ を 0°，10°，20°，30°，40° として数値解析を行った．図 4 に色度図を示す．色度図を見ると sRGB 表色系（図中の点線で囲まれた三角形）の外側に座標が位置している．このことから自然界に存在する構造色であると考えられる．また，色が表記されている扇型の淵付近に座標が位置していることから光沢を持つ彩度の高い色である．なお，$\phi = 0°$〜$90°$ として計算したが方位角による色度座標の

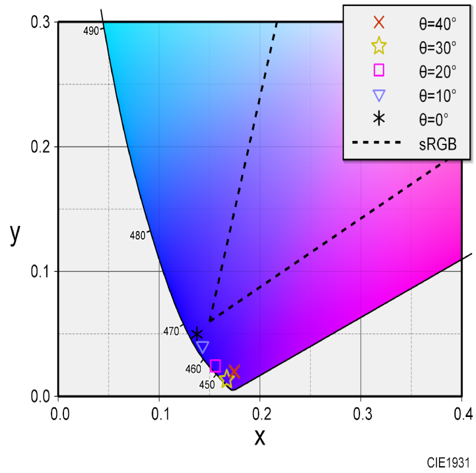

図 4: θ に対する色度座標の変化

変化は見られなかった．

次に，ϕ=45° としたときの入射波長に対する反射スペクトルを図 5 に示す．同図から入射角 θ が 30°，40° のときピーク波長が短くなり，可視光領域の下界 360〜400[nm] に近づき人間の目には見えない，つまり黒い色に近づいている．θ が 10° の時は青色である 465[nm] 付近にピークを持っており，ピークの帯域が狭く彩度の高い青色であることがわかる．

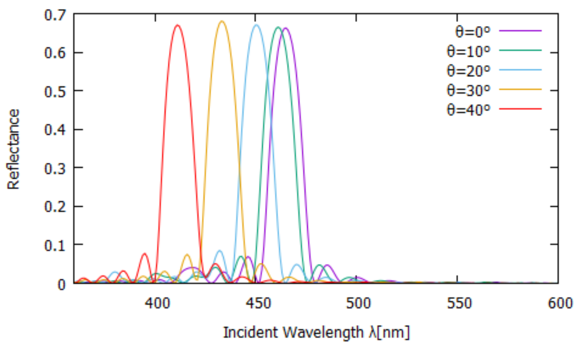

図 5: 入射波長に対する反射スペクトル

6 むすび

本研究ではルリスズメダイの体表を多層周期構造とし構造色の数値解析および検討を行った．計算機による数値解析により入射角が 0°〜20° ではピークの幅が狭く彩度の高い青色を発色すること，方位角の変化による観察色の変化が小さいことがわかった．今後方位角の変化

や体積占有率の変化などパラメータ変更による観察色の違いや構造性複屈折近似によるモデルとの比較検討を行っていきたい．

付録 理想型と非理想型の多層膜の干渉条件

多層膜干渉は自然界で最も多く分布している構造発色の基本構造の 1 つである．屈折率の異なる周期的な層があり、それが適当な厚さをもっていると干渉を起こして発色する。定性的には薄膜が重なったものと考えるとわかりやすい [4]．今、屈折率 $\sqrt{\varepsilon_a}$ の媒質 A と屈折率 $\sqrt{\varepsilon_b}$ の媒質 B があるとする．d_a, d_b をそれぞれの膜の厚さ，膜の法線から測った入射角を θ_a，膜内の屈折角を θ_b，入射する光の波長を λ，m を整数として往復分の光路長としてそれぞれの和を取ると，

$$2(\sqrt{\varepsilon_a} d_a \cos\theta_a + \sqrt{\varepsilon_b} d_b \cos\theta_b) = m\lambda \qquad (22)$$

となる．さらに A 層だけについて考えてみると干渉条件は次式のようになる．

$$2\sqrt{\varepsilon_a} d_a \cos\theta_a = \left(m' - \frac{1}{2}\right)\lambda \qquad (23)$$

ここで m' は整数である．このように多層膜では 2 つの干渉条件が常に存在する．この式 (22)，(23) が成り立つ時には反射光は全て強め合い，この場合を「理想的な多層膜」と呼んでいる．これに対し，式 (22) のみが成り立つ場合を「非理想的な多層膜」と呼んでいる [2]．モルフォチョウの翅は「理想的な多層膜」が構造色の一因となっており文献 [4] で報告されている．一方，本論文で検討しているルリスズメダイの体表は「非理想的な多層膜」を有する構造である．

参考文献

[1] 沖縄ダイビングライセンス・ワールドダイビング `https://www.owd.jp/fish/`スズメダイ科/ルリスズメダイ/(参照 2019 年 8 月 22 日)

[2] 若林秀昭，山北次郎，微細周期構造における構造性発色の 3 次元数値解析，電気学会論文誌 A，pp. 661〜667 (2017)

[3] 日本色彩学会編, 新編 色彩ハンドブック第 2 版, 東京大学出版会 (1998)

[4] 木下修一, 近藤寿人, 生物ナノフォトニクス -構造色入門-, 朝倉書店 (2010)