

田中メタマテリアル研究室
Metamaterials Laboratory

准主任研究員 田中 拓男 (工博)
TANAKA, Takuo (Ph.D)



キーセンテンス：

1. 光の限界を超える
2. 光を思いのままに操る
3. ナノの世界を光で観る
4. 光を閉じ込める
5. ナノスケールの3次元構造を光で作る
6. 超大容量光メモリを開発する
7. 光の教科書を書きかえる

キーワード：

プラズモニック・メタマテリアル, メタマテリアル, 光, 光学, 光子, フォトニクス, プラズモニクス, ナノフォトニクス, 近接場光学, 電磁気学, 自由電子, 表面プラズモン, エバネッセント場, ナノ金属共振器, レーザー, ナノファブ리케이션, レーザー物理, レーザー加工, フェムト秒レーザー, 光機能デバイス, 大容量光メモリ, 3次元光メモリ, 光電変換デバイス, メタフォトニクス

研究概要

当研究室では、「メタマテリアル」と呼ばれるナノスケールの金属構造体で構成された人工光機能物質を開発している。従来の光学理論では、物質の光学特性は物質固有のものであり、物質が決まれば自動的に決まってしまうというのが常識であった。これは物質が決まればその物質中での光の振る舞いが一意に決定されてしまう事を意味していた。メタマテリアルは、この物質固有と考えられてきた誘電率や透磁率を、ナノ構造体を用いて人工的に制御し、全く新しい機能をもつ光学材料を作り出す技術である。このメタマテリアルを使えば、例えば、光周波数の磁場に直接応答する物質や、屈折率がゼロ、負、もしくは何百万といった巨大屈折率物質など、「あり得ない」物質を生み出すことができ、このような物質は、物質境界面で発生する光の反射を完全に除去したり、光を空間中に止めるといった全く新しい光現象を発現させる。我々は、この人工物質を活用して、光（フォトン）を自由自在に操ることができる新しいフォトニクス技術の開拓を目指している。これ以外にも、ペタバイトクラスの記録容量を持つ超大容量光メモリの開発や、ナノスケールの3次元構造を光で加工するレーザー加工技術、大規模電磁場シミュレーションソフトウェアの開発を行っている。

1. 自己組織化を利用したメタマテリアルの作製 (玉木, 田中)

DNAの自己組織化を利用し、金ナノ粒子を円環状につなぎあわせたメタマテリアル素子の作製を行っている。DNAの自己組織化は量産性が高いので、センチメートルスケールの試料を簡便に作製することが可能である。本研究では、直径20 nmの金ナノ粒子の三量体リングを作製し、その光学特性を調べた。石英基板への固定化に伴い、三量体リングは基板表面に水平に配向した。入射角を変化させながら透過スペクトル測定を行ったところ、入射光の偏光方向が三量体リングの面と一致するにしたがって、三量体リングの構造に由来するプラズモン吸収が増大した。これにより、金ナノ粒子三量体リングは、主に光の電場成分と相互作用していることがわかった。DNAの自己組織化を用いた金ナノ粒子の円環構造の作製と、その光学特性の評価法を確立することができ、今後のメタマテリアル素子の実現に大きく貢献した。

2. メタマテリアル構造の磁気アセンブリ手法の最適化 (柳沼, 田中)

プラズモニック・メタマテリアルにおける3次元性・大量生産性という課題の克服と動的素子の開発に向けて、コロイド多元系の磁気双極子・双極子相互作用を利用し、金で修飾された微粒子のリング構造体を可逆的に形成させてメタ分子とするための実験パラメータの最適化を行った。まず、常磁性と反磁性の様々なマイクロ粒子を組み合わせて磁性流体中に分散させた試料に外部磁場を印加し、リング構造形成におけ

る粒子のサイズと磁化方向との関係を比較した。その結果、常磁性微粒子から成るリング構造と反磁性微粒子から成るリング構造を、粒径の違いによって作り分けることができた。次に、粒子の磁気双極子相互作用に及ぼす磁性流体の影響を検証した。磁性流体の濃度が高くなると、常磁性体のリング構造は構成粒子数が大きくなるのに対し、反磁性体のリング構造は構成粒子数が小さくなる傾向が見られた。こうして得られた知見を金ナノ粒子に適用して、リング構造体の小型化・高密度化を試みた。

3. グラフェンを用いた動的磁気メタマテリアルの創製 (石川, 田中)

グラフェンでできた動的メタマテリアルの作製とそのテラヘルツ領域における磁気応答の評価に取り組んだ。まず、シリコン基板上に転写したCVD成長グラフェンに対して、フォトリソグラフィおよび酸素プラズマエッチングを用いて、線幅1 μm の短冊形状を有するメタマテリアル構造の作製を行った。次に、電子ビーム蒸着を用いてゲート電圧印加用の金電極を作製した後、フーリエ変換型赤外顕微分光装置を用いて赤外特性を評価した。測定では、シリコン基板と金電極の間にゲート電圧を印加し、正孔キャリアをグラフェン構造にドーピングした際の反射赤外光を分光計測した。その結果、周波数6 THz付近に、グラフェンメタマテリアルの磁気応答に起因する特徴的な赤外吸収を観測し、その磁気応答特性がゲート電圧で動的に制御できることがわかった。さらに、このグラフェンメタマテリアルを用いた高感度な生化学センシングや高効率な赤外光源への応用について検討した。

4. 金属ナノ構造体を利用した太陽電池デバイス特性の向上 (久保, 田中)

金属ナノ構造体はプラズモン共鳴を示し、共鳴時には構造体のごく近傍に増強された電場を示す。このプラズモン電場増強効果は光電変換デバイスの高効率化において重要な役割を果たすと期待される。そこで本研究は、金属ナノ構造体を太陽電池の活性層中に埋没し、光電変換特性の向上を試みた。具体的には、形状、大きさ、配列を制御した金属ナノ構造体を透明電極上に作製し、太陽電池の光電変換層に埋没した。金属ナノ構造体の作製には、薄膜の塗布とエッチングを組み合わせた微細加工技術、ナノコーティングリソグラフィ法を利用した。金属ナノ構造体の形状やサイズの適切な設計と、適切な金属種の選定によってプラズモン共鳴波長を調整し、太陽電池の光吸収量の増加を図った。

5. 表面プラズモン共鳴によるVO₂の絶縁体-金属相転移の誘起 (島崎, 玉木, 田中)

二酸化バナジウム(VO₂)は転移温度68°Cで絶縁体-金属相転移を起こし、それに伴い電気抵抗や光学的性質が大きく変化する物質である。本研究は、この相転移を光の照射で誘起し制御することを目指している。プラズモニック物質である金ナノ粒子(直径20 nm)とVO₂薄膜(厚さ60 nm)の複合体を作製し、赤外光透過率(波長1550 nm)の温度変化を測定した。その結果、転移温度付近で透過率が大きく変化するヒステリシス曲線を得た。そして測定点に可視光領域の制御光を照射しながらこの測定を行うと、制御光を照射しない場合と比較してヒステリシスは低温側にシフトした。特にこの複合体のプラズモン共鳴波長である赤色の光(波長635 nm)を照射すると、ヒステリシスは大きくシフトすることを見出した。これらの現象を通じ、金ナノ粒子の表面プラズモン共鳴の光エネルギー吸収により、VO₂の絶縁体相から金属相への相転移の誘起をアシストできることを明らかにした。

6. 微細加工技術を用いた波長変換素子の構築 (横田, 田中)

金属微細構造と光波との相互作用を利用して、従来とは異なる原理に基づく波長変換素子の構築を目指している。湾曲した金属曲線などの複雑な二次元金属ナノ構造を作製することが可能な電子線リソグラフィ・リフトオフ法を用いて、ガラス基板上に高精度に配列した金ナノ構造を作製した。作製した湾曲金ナノロッド構造を顕微鏡下にて透過スペクトル計測を行ったところ、近赤外領域で2つの吸収ピークが観測された。様々なサイズの金ナノロッドの吸収ピークと比較して、湾曲金ナノロッドは曲線形状に起因するプラズモン共鳴ピークが得られることを明らかにした。構造サイズ、湾曲形状を変化させた湾曲金ナノロッド構造も作製し、偏光依存性についても明らかにした。

7. 金属ナノ構造を用いた光吸収メタマテリアルの創製 (石川, 田中)

高い光反射率を有する平坦な金属表面にナノ構造を導入することで、逆に光を効率良く吸収できるメタマテリアルの作製とその赤外特性の評価に取り組んだ。デバイス作製では、電子ビーム蒸着を用いてCr, Au, MgF₂を蒸着したガラス基板上に、フォトリソグラフィおよびリフトオフプロセスを用いて、線幅3 μm の

短冊形状を有するメタマテリアル構造の作製を行った。フーリエ変換型赤外分光装置を用いて作製したメタマテリアルの赤外吸収特性を評価した結果、波長 3 ~ 15 μm の中赤外領域において特異な赤外吸収を観測した。有限要素法を用いた電磁気応答解析の結果、これらの金表面での反射光抑制とそれに伴う強い光吸収が、作製した金ナノ構造に励起される局在型表面プラズモンモードに起因することがわかった。また、この光吸収メタマテリアルを用いた高効率な光熱発電システムや高感度な生化学センシングへの応用についても検討した。

Key Sentence :

1. Transcend conventional light theory
2. Control the light as we want
3. Observe the nano-world by the light
4. Confine the photons in the nano-scale space
5. Create nano-scale 3D structure by the light
6. Create extremely large capacity optical data storage
7. Rewrite the conventional textbook of optics and photonics

Key Word :

plasmonic metamaterials, metamaterials, light, optics, photons, photonics, plasmonics, nanophotonics, near-field optics, electromagnetics, free electrons, surface plasmon, evanescent field, nano metal resonator, laser, nano fabrication, laser physics, laser fabrication, femto-second laser, functional optical devices, large capacity optical memory, three-dimensional optical memory, photoelectric transducer, metaphotonics

Outline

In this research laboratory, we are intensively investigating the breakthrough science and techniques that can artificially control the electro-magnetic properties of the materials by using metal nano-structures. We collectively call these artificial materials "metamaterials". In the past, it has been believed that the electro-magnetic properties of materials such as permittivity and permeability are determined by the intrinsic property of the materials itself and no one can alter them. This suggests that the propagation of the light inside the material is uniquely determined by the material itself and it can only be controlled by modifying the shapes/structures of the materials. Metamaterial technology can control the permittivity and permeability of the materials and can create unprecedented optical materials such that it can interact directly with the magnetic components of the light, in which the refractive index can be zero, negative or tremendously giant values. These kinds of materials can create the extraordinary optical phenomena such that it can eliminate the light reflection at the materials boundary, can confine the photons in the nano-scale space. We also intensively extend the application of metamaterials to develop novel and functional photonic devices that can manipulate the photons with complete control. In addition, other active studies for the development of peta-byte optical data storage system, the development of novel laser fabrication technology of nano-scale three-dimensional structures, and the development large-scale electro-magnetic simulation software are running concurrently.

1. Self-assembly for Fabrication of Metamaterials (Tamaki, Tanaka)

We fabricate rings of gold nanoparticles for metamaterials by using self-assembly of DNAs. The mass productivity of self-assembly of DNAs enables us to fabricate samples with centimeter scale. In this research, we fabricated trimer rings consisting of three gold nanoparticles with 20 nm in diameter and investigated their optical properties. After the trimer rings were immobilized on a quartz substrate, the plane of trimer rings oriented parallel to the plane of the substrate surface. As the incident polarization agreed with the plane of the trimer rings, the plasmonic absorption corresponding to the trimer ring structure became pronounced in the transmission spectrum. This result indicates the

trimer rings mainly interact with the electric component of the incident light. We demonstrated the fabrication of the ring structure of gold nanoparticles and the analysis of the optical properties, contributing to the further investigation of metamaterials fabricated by using self-assembly of DNAs.

2. Optimization of Experimental Parameters on Magnetic Assembly of Metamaterial Structures (Yaginuma, Tanaka)

We have been studying the magnetic assembly of metamaterial elements. Because of magnetic dipole-dipole interaction, mixed suspensions of paramagnetic and diamagnetic colloidal particles reversibly assemble into ring structures in ferrofluid. We have optimized experimental parameters for tailoring the magnetic response of various Au-coated microparticle components to form the ring structures, which act as plasmonic resonators. Applying an external magnetic field, the paramagnetic (diamagnetic) microparticles exhibit magnetic polarization in parallel (antiparallel) direction. The ring structure is composed of smaller particles, surrounding larger particles as a center. The number of the paramagnetic (diamagnetic) microparticles forming each ring structure tends to increase (decrease) with ferrofluid concentration. The results are expected to serve for the magnetic assembly of colloidal particles downsized to the nanometer scale, leading to smaller and denser ring structures.

3. Graphene-Based Tunable Magnetic Metamaterials (Ishikawa, Tanaka)

We have fabricated tunable magnetic metamaterials made of graphene and characterized their magnetic responses at terahertz frequencies. Our sample started with CVD-grown graphene transferred onto a Si substrate, followed by photolithography and oxygen plasma etching processes to fabricate a micro-sized graphene ribbons structure. The sample was then completed by depositing Au film as a gate electrode using electron beam evaporation. Using a FT-IR microscope, terahertz spectrum of the graphene metamaterial was measured by applying a DC gate bias to induce hole carrier into the graphene. An absorption dip due to magnetic plasmon resonances of the structured graphene was clearly observed at ~ 6 THz, demonstrating gate-tunable magnetic responses at terahertz frequencies. The application of graphene metamaterials was also studied, such as a high-sensitive biochemical sensor and a high-efficiency infrared source.

4. Improvement of Solar Cell Device Performance by Metal Nanostructure (Kubo, Tanaka)

Metal nanostructure shows plasmon resonance, leading to the generation of strong electromagnetic field at the vicinity of the structure. The phenomenon, the plasmon electric enhancement effect, will play an important role in improving photoelectric device performance. This study tried to improve the photo-conversion efficiency by embedding metal nanostructures into the active layer of a solar cell. In particular, we fabricated metal nanostructures with appropriate size, shape and alignment, and embedded them into the active layer of a solar cell device. Metal nanostructures were fabricated by nanocoating lithography technique, based on nanocoating and etching techniques. By designing the size and shape of metal structures, we could control their plasmon resonance wavelength, leading to the absorption increase of a solar cell.

5. Surface-Plasmon Resonance Induced Insulator-metal Transition in VO₂ (Shimazaki, Tamaki, Tanaka)

Vanadium dioxide (VO₂) undergoes insulator-metal transition at critical temperature (T_{cr}) around 68°C, accompanying steep changes of optical and electric properties. In this study, we aim at inducing and controlling the phase transition by light irradiation. We fabricated a composite of Au nanoparticles (20 nm in diameter) and VO₂ film (60 nm in thickness), and measured temperature dependences of infrared (1550 nm) transmittance. A hysteresis curve with steep change of the transmittance around the T_{cr} was obtained. The hysteresis curve shifted to lower temperature side when a control light of visible region was irradiated. Especially the hysteresis showed large shift when a red light, (635nm)

that is plasmonic resonance wavelength of the composite, was irradiated. Those phenomena clarified that the transition from insulator phase to metal phase in VO₂ can be assisted by absorbed light energy with the plasmonic resonance.

6. Construction of the Wavelength Conversion Element using Semiconductor Nanofabrication Technique (Yokota, Tanaka)

We are expecting that construction of the wavelength conversion element based on the strong interactions between nano-meter scale metal structures with light. In this study, We fabricated gold curvilinear nanostructures that were artificially designed curve geometry using electron beam lithography and lift-off technique. Optical properties of the fabricated nanostructures were characterized by their absorption spectra, which were measured using a commercially available Fourier-transform infrared spectrometer equipped with a microscope attachment. Extinction spectrum of gold curvilinear nanostructures has two resonant peaks in near-infrared region. Compared to resonant peaks of gold nanorods, these results indicate that the longer peak wavelength is originated in the total arc length of the curvilinear shape. In addition, we have successfully clarified the polarization property of gold curvilinear nanostructures.

7. Metamaterial Light Absorber Made of Plasmonic Nanostructures (Ishikawa, Tanaka)

We have fabricated metamaterial light absorbers by introducing nanostructures onto a flat metal surface, which usually exhibits high reflectance, and characterized their infrared light absorption properties. Using electron beam evaporation, Cr, Au, and MgF₂ films were firstly deposited on a glass substrate. The sample was then completed by fabricating reed-shaped Au nanostructures on the film surface using photolithography and liftoff processes. Infrared reflection spectrum of the metamaterials was measured by using a FT-IR, demonstrating anomalous light absorptions in the mid-infrared wavelength region of 3 ~ 15 μm. The corresponding numerical simulations based on the finite-element-method revealed that localized surface plasmons in the nanostructures induced strong light absorptions by reducing the reflection from the flat Au surface. We have also investigated the application of metamaterial light absorbers, such as a high-efficiency solar thermal power generation and a high-sensitive biochemical sensor.

Principal Investigator

田中 拓男 Takuo Tanaka

Research Staff

青木 画奈 Kanna Aoki
石川 篤 Atsushi Ishikawa
久保 若奈 Wakana Kubo
玉木 (渡邊) 亮子 Ryoko Watanabe-Tamaki
柳沼 晋 Shin Yaginuma
横田 幸恵 Yukie Yokota

Assistant and Part-timer

矢崎 弥栄子 Yaeko Yazaki
木村 真理子 Mariko Kimura

Students

醍醐 諒 Makoto Daigo
池田 翔 Sho Ikeda
Ahmed Abumazwed
陳 哲勤 Che-Chin Chen

Visiting Members

島崎 勝輔 Katsusuke Shimazaki