

## 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

### 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, ナノファブリケーション, 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. 金属ナノ構造を用いたVO<sub>2</sub>の絶縁体-金属相転移の低温誘起 (田中)

二酸化バナジウム (VO<sub>2</sub>) は転移温度 68°Cで絶縁体 - 金属相転移を起こす相変化物質の1つである。本研究では、表面プラズモン共鳴に伴う電場増強効果を利用して、VO<sub>2</sub>の相転移温度を変化させる実験を行った。具体的には、金ナノ構造がVO<sub>2</sub>薄膜に埋め込まれた材料を試作し、金ナノ構造の局在表面プラズモンを励起できる可視光を照射しながらVO<sub>2</sub>薄膜の赤外光透過スペクトルの特性を評価した。その結果、可視光領域の光を照射しながらこの測定を行うと、可視光を照射しない場合と比較してVO<sub>2</sub>薄膜の相変化に伴う赤外光透過率のヒステリシス曲線は低温側にシフトすることを確認した。

#### 2. プラズモニック太陽電池の発電特性に対するプラズモニックナノ構造体の影響(久保, 田中)

従来、金属ナノ構造体のプラズモン共鳴を利用したプラズモニック太陽電池に関する論文が多数報告されている。それらの中には、有機薄膜太陽電池の発電特性が向上したものもあれば、むしろ低下したとする報告もあり、発電特性に対するプラズモニック構造体の効果は不明である。そこで、発電特性に対するプラズモニック構造体の影響を調査するために、サイズや密度を精密に制御した金ナノドット構造体を有機薄膜太陽電池に埋没して、発電特性と金ナノドット構造体の物理的特性との相関について調査を行った。その結果、埋没する金ナノドット構造体の密度が発電特性に著しく影響を与えることを見出した。また、どのようなサイズそして密度の金ナノドットを利用しても、発電特性の向上は観察されなかった。これら

の結果から、より優れたプラズモニック太陽電池の開発するためには、プラズモンによる光学的効果のみならず、電荷の生成や拡散、再結合プロセスなどのダイナミクスをも検討しなければならない可能性が示唆された。

### 3. 湾曲金ナノロッド構造のプラズモンカップリング効果 (横田, 田中)

金属ナノ構造は、構造同士が数ナノメートルで近接した場合にナノギャップで強い電場増強が誘起され、高感度化学・バイオセンサーへの応用が期待される。これまでに湾曲金ナノロッドは単純な直線ナノロッドと異なる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。本研究ではナノギャップを有する湾曲金ナノロッドダイマー構造の曲線形状及び構造配置に起因する特異なプラズモンカップリングによる光学特性について計測した。電子線リソグラフィとリフトオフ法を用いて、ナノギャップ位置の異なる種々の湾曲金ナノロッドダイマー構造を作製し、顕微透過スペクトルを測定した。それぞれの透過ピークを比較して、湾曲ナノロッド弧長由来のプラズモン共鳴ピーク波長はナノギャップ位置により大きく異なることを明らかにした。

### 4. 位相シフト導波グレーティング構造を用いた多パラメータ同時計測デバイスの開発 (Mudachathi, 田中)

我々は、格子構造に位相シフトを導入した導波路デバイスを用いて、そのデバイス表面に付着させた物質の複数の特性を同時に計測する技術を研究している。具体的には、周期構造中に欠陥構造を導入したフォトニック結晶導波路において、フォトニックバンド端のスペクトルピークと欠陥に起因するスペクトルピークを測定すると、フォトニックバンド端のスペクトルはグレーティング全域に付着した物質の影響を受けるのに対して、欠陥モードのピークは欠陥部のみに印加される導波路のストレスのみを反映することを数値計算を用いた明かにした。この結果をもとに、SOI (Silicon on Insulator) 基板に欠陥あり／なしのフォトニック結晶導波路構造を作製し、複数の導波モードをその透過スペクトルから同時に検出できることを確認した。そして、フォトニックバンド端のスペクトルピークは導波路表面の屈折率に依存して変化し、一方欠陥モードのスペクトルピークは導波路に印加される力学的なストレスと温度変化によって変化することを確かめた。

### 5. 可視光域で動作する波長可変三次元メタマテリアルの設計と加工法の開発 (Mudachathi, 田中)

分割リング型共振器を用いた波長可変三次元メタマテリアルの設計と加工法に関する実験を進めている。これまでの研究で、周波数約 30THz の中赤外領域で動作する三次元分割リング共振器アレイの設計と加工については成功したので、現在この動作周波数を 1 桁程度高くして可視光領域に共振周波数を持つ構造へと展開させている。加工法については、電子線描画法と金属の残留応力を用いた自己組織化を融合させた新しい加工技術を開発し、この技術を中心に実験を進めながら、加工パラメータの洗い出しとその最適化を行っている。

### 6. 光吸収メタマテリアルを用いた表面増強赤外分光法の開発 (石川, 田中)

光吸収メタマテリアルのプラズモニックモードと自己組織化単分子膜の赤外振動モードとの共鳴結合に基づく、新規な表面増強赤外分光法の実証に取り組んだ。光吸収メタマテリアルは、Au/MgF<sub>2</sub> 積層マイクロリボンが Au 薄膜表面に 1 次元アレイ化された構造をしており、これをフォトリソグラフィ、電子ビーム蒸着、リフトオフ法を用いて作製した。フーリエ変換型赤外分光装置を用いてメタマテリアルの赤外吸収特性を評価した結果、C-H 基の伸縮モードが存在する中赤外領域 ( $\sim 3000\text{cm}^{-1}$ ) において特異な赤外吸収を観測した。検出分子には、16-Mercaptohexadecanoic acid を用い、Au 表面とチオール結合した厚み 2nm の自己組織化単分子膜の作製を行った。表面増強赤外分光実験では、メタマテリアルのブロードなプラズモン吸収線内に、対称／非対称の C-H 伸縮モードが、ファノ型の明瞭な共鳴反射ピークとして観測できた。メタマテリアルを用いた本手法は、既存の赤外吸収分光法の更なる高感度化に応用できると考える。

### 7. フェムト秒レーザーによる YIG 加工を用いた磁気光学回路 (雨宮, 石川, 田中)

本研究では、新しい磁気光学機能チップの実現を目的に、透明かつ非常に大きい磁気光学効果を有する、セリウム (Ce) を添加したイットリウム鉄ガーネット (YIG) に対してフェムト秒レーザーを用いた 3 次元光加工を行っている。実験の結果、YIG 内部の光学 (屈折率) および磁気特性 (保磁力) の両方を、任意の 3 次元ナノ領域にお

いて変化させることに成功した。具体的には、レーザー照射領域において、YIGの屈折率は0.013 ~ 0.015 (YIG固有の屈折率に対して0.7%)の増加し、磁気特性はハードからソフトへ移行した。本手法を用いると、YIG内部に磁気光学回路を実現することが可能になることが確認できた。また、提案する磁気光学回路では、任意の場所に数 $\mu\text{m}$ の間隔で“非相反導波路”および“相反導波路”を集積できるので、Ce:YIG基板内に光アイソレータ・サーキュレータなどを一括集積した機能回路を作り上げることが可能となる。

-----  
**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

**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. Reduction of Insulator-metal Transition temperature of VO<sub>2</sub> using metal nanostructures (Tanaka)**

Vanadium dioxide (VO<sub>2</sub>) is known as a phase transition material, which changes its phase between insulator and metal at around 68 °C and it is induced by the various external stimulations not only temperature change but also light irradiation, and external electric field. In this research, as an application of the light field enhancement of the surface plasmon resonance, we developed gold nanostructure embedded VO<sub>2</sub> thin film, and investigated its IR transmission properties under the visible-light irradiation whose wavelength was matched with the surface plasmon resonances of Au nanostructures. We measured the IR transmission change under the red laser irradiation and found that the phase transition temperature depends on the intensity of the red laser and its hysteresis curve

shifts to the lower temperature direction under the red laser irradiations.

## **2. Effect of plasmonic nanostructure on device performance of thin organic solar cell (Kubo, Tanaka)**

Plasmonic thin organic solar cells had been reported in the past. Among them, not only enhancement but also deterioration in conversion efficiency of plasmonic solar cell had been reported, indicating that the effect of plasmonic structure on device properties remains unsolved. To clarify their influence on device performance of organic solar cells, Au nanodots with well-controlled size and density were embedded in a device, and a correlation between device performance and physical properties of Au nanodots was examined. Consequently, we found that the density of Au nanodots embedded in photovoltaic device greatly affect on device performance. On the other hand, no enhancement in conversion efficiency could be seen under any size and density of Au nanodots. These results suggest that not only plasmonic optical characteristics but also physical dynamics such as carrier generation, migration, and recombination should be considered for development of plasmonic solar cells.

## **3. Plasmon Coupling between Gold Curvilinear Nanorod Dimer (Yokota, Tanaka)**

Local-mode surface plasmon resonances of a closely-spaced dimer of two identical nanostructures strongly interact due to dipole-dipole coupling. These strong interactions are very important for applications such as sensing chemical materials and biosensor. Gold curvilinear nanorods have plasmonic resonant peaks caused by a curved shape. In this study, we present detailed studies of plasmon coupling between gold curvilinear nanorod dimer with narrow gap. Gold curvilinear nanorod dimers whose nanogap positions were varied were fabricated using an electron beam lithography and lift-off techniques. Optical properties of the fabricated nanostructures were characterized by their transmission spectra. Compared to resonant peaks, peak wavelengths that were originated from plasmon resonance of the total arc length of curvilinear shape were different at the nanogap position.

## **4. Simultaneous Multi-Parametric Sensing in Phase-Shifted Waveguide Gratings (Mudachathi, Tanaka)**

We have been working on the design and implementation of a simultaneous multi-parametric sensing scheme based on the differential sensitivity of multiple transmission modes in phase shifted waveguide gratings. The differential tuning of band edge and defect mode transmissions has been demonstrated using transfer matrix method and it showed that the wavelength of defect mode transmission depends only on the defect layer and those for band edge transmission on the bulk grating properties. Several devices with and without defect layer have been fabricated on SOI wafer using the state of the art micro/nano fabrication technique and the experimental results show the presence of multiple transmission modes. These transmission modes can be tuned selectively by altering surrounding refractive index, strain or temperature, providing a means for simultaneous multi-parametric sensing.

## **5. Design and fabrication of tunable 3D SRR metamaterials for applications in the visible region (Mudachathi, Tanaka)**

We are working on the design and fabrication of tunable 3D split ring resonator (SRR) metamaterials operating in the visible region of the electromagnetic spectrum. The device will later be configured as a thermal radiation sensor, which has response in the visible region of the spectrum. We have optimized the fabrication process using the state of the art micro/nano fabrication technique, which is comprised of e-beam lithography, metal thin film deposition, liftoff and dry etching. Larger structures having response in the terahertz region have been fabricated in which the 3D topology was obtained from the releasing of residual stress in the prestressed metal thin films by the sacrificial etching of silicon substrate. The same process will be extended to the fabrication of smaller structures whose optical response is expected to be in the visible region of the spectrum.

## **6. Surface-Enhanced Infrared Absorption Spectroscopy by Metamaterial Absorber (Ishikawa, Tanaka)**

A novel surface-enhanced Infrared (IR) molecular detection technique is experimentally demonstrated by utilizing the resonant coupling of plasmonic modes of a metamaterial absorber and IR vibrational

modes of a self-assembled monolayer (SAM). The metamaterial absorber consisted of 1D array of Au/MgF<sub>2</sub> micro-ribbons on a thick Au film and was fabricated using photolithography, electron beam evaporation, and liftoff processes. Infrared reflection spectrum of the metamaterial was measured by using a FT-IR to demonstrate an anomalous IR absorption at  $\sim 3000 \text{ cm}^{-1}$ , which spectrally overlapped with C-H stretching vibrational modes. 16-Mercaptohexadecanoic acid (16-MHDA) was then used as a test molecule, which formed a 2-nm thick SAM with their thiol head-group chemisorbed on the Au surface. In the measurements, the symmetric and asymmetric C-H stretching modes were clearly observed as Fano-like anti-resonance peaks within a broad plasmonic absorption of the metamaterial. Our metamaterial approach may open up new avenues for further lowering the detection limit of direct IR vibrational spectroscopy.

#### **7. Magneto-Optical Integrated Circuits by femtosecond laser modelling in YIG (Amemiya, Ishikawa, Tanaka)**

With the goal of creating novel magneto-optical devices, we demonstrated forming micro/nano structures inside a cerium-substituted yttrium iron garnet (Ce:YIG) by means of direct laser writing. Laser irradiation changed both the optical and magnetic properties of Ce:YIG. The measurements showed that the refractive index was increased by  $0.013 \sim 0.015$  (about 0.7% change) and the magnetization property was changed from hard to soft to decrease the coercivity. This technology enables us to form a magneto-optical integrated circuits (MOIC) inside Ce:YIG wafer, where both reciprocal and non-reciprocal waveguides can be integrated at a spacing of several tens of microns.

### ***Principal Investigator***

田中 拓男      Takuo Tanaka

### ***Research Staff***

早澤 紀彦      Norihiko Hayazawa

石川 篤      Atsushi Ishikawa

久保 若奈      Wakana Kubo

玉木 (渡邊) 亮子      Ryoko Watanabe-Tamaki

横田 幸恵      Yukie Yokota

### ***Assistant and Part-timer***

矢崎 弥栄子      Yaeko Yazaki

木村 真理子      Mariko Kimura

栗野 佳子      Keiko Awano

小笠原 タイザー 愛美      Manami Taiza Ogasawara

### ***Students***

Ahmed Abumazwed

庄司 翼      Tsubasa Shoji

小形 陽介      Yosuke Ogata

原 成植      Naruki Hara

### ***Visiting Members***

島崎 勝輔      Katsusuke Shimazaki

陳 哲勤      Che-Chin Chen