

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. 磁場による3次元メタマテリアルの自己組織的形成 (青木, 田中)

メタマテリアルは電磁波に対する透磁率を人為的に操ることが特徴であるが、そのような現象を発現するには、目的波長の1/2から1/10程度の大きさの共振器構造を無数に媒質中に埋め込む必要がある。このような共振器構造を、安価に、精度良く、大量に媒質中に形成する技術として、外部磁場印加による微粒子自己組織化法の開発を進めている。今年度は共振器構造の単位部品としてプラスチック微小球上にニッケル、更に金を被覆した多層コアシェル微小球を用いた。これにより、磁化率が極めて小さい金の磁気応答性を強磁性体であるニッケルで補い、常磁性的な磁場応答性を発現させることができた。直径10 μm あるいは5 μm のプラスチック球と直径2.5 μm の金コアシェル球を磁性流体中に分散し、これに外部磁場を印加することにより、プラスチック球の赤道上に金コアシェル微粒子が配列した土星様リング構造を形成することができた。磁性流体の濃度を変化させることにより、リングを形成する金コアシェル球数を任意に操作することができた。リング構造を形成する金コアシェル球同士は、互いに平行な磁気モーメントを持ったために反発し合い、自発的に等間隔に配列した規則性の高い構造を形成した。これより任意の波長で高効率に動作する共振器構造を形成する基礎技術が確立できた。

2. 自己組織化を利用したメタマテリアルの作製 (玉木, 田中)

研究年報

本研究では、DNAの自己組織化を利用して金ナノ粒子のリング構造体からなるメタマテリアル素子を量産することを目的とした。前田バイオ工学研究室で開発されたDNAテンプレートを用いて金ナノ粒子を円環状につなげる手法により、直径20 nmの金ナノ粒子の三量体リングを作製した。作製した金ナノ粒子三量体リングを石英基板に固定化し、透過スペクトルを測定した。金ナノ粒子三量体リングは、530 nmと590 nm付近をピークとするブロードな吸収を示した。次に、有限要素法を用いて金ナノ粒子三量体リングの透過スペクトルを計算したところ、実験で得られた透過スペクトルとよく一致し、実験で得られた透過スペクトルがリング構造に由来するプラズモン特性を示していることが明らかになった。

3. 二層グラフェンを用いた赤外プラズモン光源の開発 (石川, 田中)

二層グラフェン上に金属ナノ共振器アレイを装荷した、赤外プラズモン光源の作製に取り組んだ。まず、高配向熱分解黒鉛からの機械的剥離法を用いて、熱酸化膜付Si基板へのグラフェン成膜を行った。その際、Hexamethyldisilazaneの自己組織化単分子膜を用いて酸化膜表面を疎水処理することで、結晶性の高いグラフェンが製膜できることを見いだした。次に、顕微ラマン分光法による層数分析を経て得た二層グラフェンをチャンネル層とする、デュアルゲート電界効果トランジスタを作製した。自己無撞着強束縛理論に基づく解析の結果、ゲート電圧を変化させることで、最大300 meVまでのバンドギャップと $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ までのキャリア注入が実現できることがわかった。さらに、この構造に対して金属ナノ共振器アレイを装荷することで実現できる、赤外プラズモン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光電変換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。これをプラズモン電場増強効果と呼び、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考えられている。そこで本研究は、金属ナノ構造体を利用した光電変換デバイス特性の向上を目標とし、研究を行った。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作製し、太陽電池の光電変換層に適用した。金属ナノ構造体の作製には、薄膜の塗布とエッチングという簡単な技術を組み合わせた微細加工技術であるナノコーティングリソグラフィ法を利用した。形状やサイズの適切な設計と制御によってプラズモン共鳴波長を制御し、光電変換デバイスの光吸収量の増加を図った。

5. 金ナノ粒子の表面プラズモン共鳴による金属 - 絶縁体転移の誘起 (島崎, 玉木, 田中)

表面プラズモン共鳴による光の閉じ込め現象や、それに伴う周辺電場の増強効果は工業的な応用に関しても興味深い現象である。本研究では、金微粒子の局在表面プラズモン共鳴を二酸化バナジウムの相変化現象へ応用することを目的に、金微粒子 - 二酸化バナジウム複合体を作製した。二酸化バナジウムは温度によって金属と絶縁体間の相転移を起し、それに伴い電気抵抗や光学的性質が急激に変化する物質である。この複合体を60 °Cに保持し波長1550 nmの赤外光を照射した。そこへ波長635 nmの赤色光を重ねて照射すると、1550 nm赤外光の透過率が約3%低下した。この現象は、赤色光の照射によって金微粒子の局在表面プラズモンが励起され、その周囲に発生した増強電場により二酸化バナジウムの金属 - 絶縁体転移が低温度下で誘起されたと考えている。

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。これまで、電子線リソグラフィ・リフトオフ法を用いて二次元金属ナノ構造体の作製を行い、ガラス基板上にナノスケールのサイズで任意の形状を有する種々の構造体を作製する手法を確立した。さらに高精度かつ数 cm 四方に配列して作製する手法についても検討している。金属ナノ構造体はサイズや形状により局在プラズモン共鳴が異なることから、作製した構造について顕微鏡下にて透過スペクトル計測を行った。その結果、構造形状による光学特性を詳細に検討するとともに、さらに偏光特性についても明らかにした。

7. 非線形差周波発生による超高速表面プラズモンの励起 (方, 田中)

一般に、金属は非線形効果が弱く、光を激しく吸収するために非線形光学素子に適切でないとされてきた。そこで我々は、これら二つの問題を解決するために、表面プラズモンを励起する新しい手法を提案した。まず、金の薄膜の透過率が差周波発生によって変化することを見だし、その変化量が従来の熱効果由来

の変化量と匹敵することを明らかにした。今までに報告された研究と比べると、我々の実験で得られた表面プラズモンの非線形励起の効率は非常に高いことがわかった。従来手法では、ポンプ光あるいはプローブ光のどちらかを用いて表面プラズモンを直接励起するが、我々の手法では、アイドル光を利用して表面プラズモンを励起する。表面プラズモンの励起に伴う熱吸収は、ポンプ光とプローブ光に直接影響しないため、熱吸収の問題を解決することに成功した。

8. 卑金属ナノアーキテクニクスによる動的メタマテリアルの開発 (柳沼, 田中)

本研究の目的は、卑金属ナノ粒子の構造相転移や誘導自己組織化を利用して、再構成やスイッチングが可能な動的メタマテリアルを開発することである。従来のメタマテリアルでは金や銀など貴金属が用いられたのに対し、卑金属であるビスマスとガリウムはそれぞれ赤外帯域と紫外帯域においてプラズモニック効果を示す。そこで、卑金属ナノ粒子を基盤に、それらの階層構造をメタマテリアルの構成要素とするための材料探索を行った。金をガラス基板上に真空蒸着して島状の膜を成長させ、その粒子径を可視光スペクトルを用いて測定した。同様の手法をビスマスやガリウムに適用するための条件出しを行っている。

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 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. Magnetic self-assembly of 3D metamaterials (Aoki, Tanaka)

Metamaterial's controllability of magnetic permeability originates from numerous numbers of unit resonators embedded in a medium, which feature size ranges from $\lambda/2$ to $\lambda/10$. We have been developing inexpensive magnetic self-assembly technique for bulk fabrication of such unit resonators with high structural precision level. As materials of such resonators, gold or silver are often chosen because they are good medium to generate plasmonic hot spots. From a point of view of magnetic assembly, they are hardly controllable materials because they have quite small magnetic susceptibilities. To compensate for the poor magnetic susceptibility of these metals, a metal/nickel/plastic core-shell sphere was introduced. A thin nickel layer between the plastic core and metal coating dominates the sphere's magnetic behavior as a paramagnetic particle.

In experiments, plastic particles with 5 μm or 10 μm diameter as a central sphere and gold core-shell particles with 2.5 μm were dispersed in ferrofluid, which was composed of nano scale iron ferromagnetic particles dispersed in water. As we applied external magnetic field to this mixture, Gold core-shell particles gathered around an equator of a paramagnetic bead to form a Saturn-like ring resonator structure around a paramagnetic plastic bead. Gold core-shell spheres gathered around a plastic sphere kept an equal gap distance between them, producing a rotationally symmetric structure. Spontaneous symmetric structure formation resulted from repulsive forces between parallel magnetic moments induced in gold core-shell particles by an external magnetic field. The degree of repulsive force between neighboring gold core-shell microspheres, or more generally paramagnetic particles, in a necklace can be tuned by varying the ferrofluid concentration. These are essential guidelines for assembly of efficient unit resonators for metamaterials operate at intended wavelengths.

2. Self-assembly for fabrication of metamaterials (Tamaki, Tanaka)

We applied self-assembly of DNAs to fabricate a ring structure of gold nanoparticles, which can act as a metamaterial element. The fabrication process of self-assembly enables us to realize metamaterial elements with mass-productivity. Bioengineering Laboratory developed a facile method to prepare gold nanoparticles circularly binding with DNA templates. We employed this method and prepared trimer rings consisting of gold nanoparticles with a 20-nm diameter. We investigated the optical properties of the gold trimer rings by measurements and simulations. The measured transmission spectrum of the gold trimer rings indicated absorptions at around 520 nm and 590 nm. The simulated transmission spectrum was well consistent with the measured one, indicating that the self-assembled gold trimer rings exhibited the plasmonic properties attributed to the structural feature.

3. Bilayer Graphene-Based Infrared Plasmon Sources (Ishikawa, Tanaka)

We have been working on the development of novel infrared plasmon sources, based on nano-metallic resonator array embedded in a bilayer graphene. We firstly fabricated graphene films on a Si substrate with thermally-oxidized layer by using mechanical exfoliation method from HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite). In this process, we found that self-assembled monolayer of Hexamethyldisilazane, which made the thermally-oxidized layer hydrophobic, dramatically improved the crystallinity of graphene films. After specifying the number of graphene layers by Raman microscopy, we fabricated a bilayer-graphene-channel dual-gate field-effect transistor. Self-consistent tight-binding theory applied to the device proved that the bandgap up to 300 meV and carrier injection up to $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ could be obtained by changing the gate voltages. We also planed the newly development of an infrared plasmon source by fabricating nano-metallic resonator array onto this device.

4. Improvement of photoelectric 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, might play an important role in improving photoelectric device performance. This study aimed to improve the photoelectric device performance by using metal nanostructure. In particular, we applied metal nanostructures with appropriate size, shape and alignment to the photoelectric conversion layer of a solar cell device. Metal nanostructures were prepared by nanocoating lithography technique,

based on nanocoating and etching techniques. By designing the size and shape of metal structures, we control the plasmon resonance wavelength and tried to enhance the photo absorption of a photoelectric device.

5. The surface plasmon resonance of Au nano particles inducing metal-insulator transition (Shimazaki, Tamaki, Tanaka)

The enhanced field accompanied by light confinement effect of the surface plasmon resonance should be widely applicable. We study a composite of Vanadium dioxide and Au nano particles, expecting some action with the localized surface plasmon of the Au NPs. The Vanadium dioxide shows metal-insulator transition by temperature, accompanying steep changes of electric and optical properties. Keeping temperature at 60 °C, infrared light (IR; $\lambda=1550$ nm) was irradiated on the composite. When another light (Red; 635 nm) was irradiated on the same point, the transmittance of the IR light decreased by 3%. With this phenomenon, we consider that the metal-insulator transition should be induced in the Vanadium dioxide stimulated by the enhanced field, which is generated around the Au NPs with the localized surface plasmon by the red light irradiation. We conclude that the IR transmission reduction by the red light irradiation is caused by this effect.

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, gold nanostructures having arbitrary shapes were fabricated on glass substrates using electron-beam lithography and lift-off techniques. We succeeded the fabrication of highly homogeneous arrays and large-area nanostructures. Optical properties of the fabricated structures related to localized surface plasmons, and their dependencies on the size and shape were characterized by measuring transmission spectra under the microscope. In addition, we have successfully clarified the polarization property of the fabricated structures.

7. Ultrafast excitation of surface plasmons through nonlinear difference-frequency generation (Xu, Tanaka)

Metal is usually considered as unsuitable for making nonlinear optical devices because of the two reasons below. First, the intrinsic nonlinear effects of metal are very weak. Second, metal absorbs light very effectively. In this research, we partly tried to solve these two problems by using a new strategy of exciting surface plasmons nonlinearly. We found that second-order difference-frequency generation on the surface of gold thin films changes the optical transmittance, with the modulation amplitude comparable to that of conventional thermomodulation effect. The most significant advantage of our experiment over previous similar experiments by other groups is that the nonlinear excitation of surface plasmons is very energy efficient in our experiment. In those previous experiments, either the pump or the probe beam couples with surface plasmons. Here in our experiment, the idle beam of difference-frequency generation process is used to excite surface plasmons. The extra thermal loss influences neither the pump beam nor the probe beam directly. This strategy helps us to solve the problem of thermal loss.

8. Poor metal nanoarchitectonics for active metamaterials (Yaginuma, Tanaka)

We have been studying the structural phase transition and guided self-assembly of poor metal nanoparticles for reconfigurable or switchable metamaterials. In contrast to noble metals like Au and Ag, which have been employed in conventional metamaterials, poor metals of Bi and Ga are known to show plasmonic features in the infrared and ultraviolet regions, respectively. We investigated poor metal nanoparticles and their arrangements to construct the metamaterials. We created the nanometer-scale Au particles on glass substrates by vacuum evaporation method, and observed their plasmonic properties from the visible spectrum. Now we are optimizing experimental conditions to apply this technique to Bi and Ga.

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
方 煦 Xu Fang
柳沼 晋 Shin Yaginuma
横田 幸恵 Yukie Yokota

Assistant and Part-timer

木村 真理子 Mariko Kimura
佐々木 由美 Yumi Sasaki
小林 裕紀 Yuki Kobayashi

Students

Tika Kusbandiah

Visiting Members

島崎 勝輔 Katsusuke Shimazaki