

**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. 金属ナノ構造を用いて新奇光学材料を創製
2. 金属ナノ粒子を利用した大容量光ディスク
3. 2光子吸収を利用した3次元ナノ加工技術

**キーワード：**

メタマテリアル, プラズモニクス, ナノフォトニクス, 光メモリ, 光計測, 光加工, 光記録

**研究目的**

これまで、物質の電磁気学的な特性は、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ものとされてきました。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、光の伝播を制御するには、物質をどんな形に加工するか自由がないことを意味していました。当研究室では、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ることで人工的に制御し、全く新しい光機能性材料とフォトニクスにおけるブレイクスルー技術の創出を目指します。これは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」物質を人工的に作りだすことを意味しており、我々はこれらを総称して「メタマテリアル」と呼んでいます。我々は、この人工物質を用いて、自在に光（フォトン）を制御する新しいフォトニクス技術へ展開してゆきます。

**1. プラズモニク・メタマテリアル (田中, 中野\*3, 武安\*1)**

メタマテリアルを構成する金属ナノ構造を高速に大量に作製する手法として、ナノインプリント法の検討を行った。ガラス基板にスピコートしたレジスト膜を紫外線レーザーの干渉パターンで感光して現像した後、Reactive Ion Etching (RIE)法でガラス基板をエッチングすることで、格子間隔400nm, 格子深さ約200nmの格子パターンを作製した。このガラス基板をモールドとして利用し、これをもう1枚のガラス基板表面にスピコートしたPMMA膜にプレスすることで、モールドのナノ格子構造をPMMA膜に転写するナノインプリント法を試した。そして、凹凸が形成されたPMMA膜表面に金を100nmスパッタリングすることで、金属ナノ構造を作製した。実験では、約5mm角のナノ凹凸構造を一回のナノインプリントで転写できることを確認した。また、作製した構造の光学特性をフーリエ変換型赤外分光器を用いて測定し、周波数50THz領域にナノ構造に由来する光の異常吸収線が存在することを確認した。

**2. 3次元多層テラバイトメモリ (田中, 鈴木\*3)**

ローダミンB色素分子/金イオン複合材料を記録材料に用いて、10層の記録層を持つWrite-Once型多層光ディスクを試作した。試作した多層ディスクは、膜厚6ミクロンのPMMA粘着フィルムをパッファ層に使用し、スピコートした記録層を交互に積層したものである。実験では、このディスクを用いて、2光子記録によるビット情報の記録と、共焦点蛍光ピックアップによる再生を行った。ダイナミック記録・再生実験において、記録層間のクロストークや記録密度、各記録層からの再生信号の強度などの特性を評価し、全記録層に渡り3次元的なランダムアクセスが可能である事を示した。

**3. 2光子還元を用いた3次元金属ナノ加工 (田中, 武安\*1, Yaoyu\*6, 中山\*3, 中野\*3, 段\*7, 河田)**

フェムト秒レーザーを金属イオンを含む材料中に集光すると、その焦点において2光子吸収が起こり、金属イオンが金属に還元される。この現象を利用すると、レーザースポットを金属イオン含有材料中で走査するだけで、3次元金属ナノ構造を自在に作製できる。これを2光子還元法と呼んでいる。これまでは、生成された金属ナノ結晶がレーザー照射後も成長するため、そのサイズが最終的にはサブミクロンサイズの金属微粒子にまで成長するといった現象が確認されていた。そしてこの結晶のサイズが最終的な加工分

解能を決めていた．そこでこの金属結晶の成長を制御・抑制し，金属パターンを構成する金属微粒子のサイズを微細化することで加工分解能の向上を図った．具体的には加工材料である銀イオン水溶液に銀結晶の表面に効率よく結合する界面活性剤を添加することにより，生成された金属ナノ結晶の表面を界面活性剤でコートすることで金属結晶の結晶成長を抑制した．その結果，光の回折限界を大幅に超える120nmの加工分解能を実現した．そして，この手法を使って3次元銀ナノ構造を作製することでその有効性を実証した．

#### 4．2光子重合法における加工分解能の理論的解析（武安\*1，田中，河田）

紫外光硬化性樹脂に近赤外フェムト秒レーザーを集光すると，その焦点では2光子吸収過程を経てポリマーが生成される（2光子重合）．そこに含まれる各素反応を考慮した2光子重合反応モデルを提案した．そしてそのモデルに基づき，重合に必要なとされるレーザーパワーや加工分解能についての理論的な解析を行った．計算機シミュレーションの結果，実験で見られるような重合閾値の存在や本手法による最小加工サイズを理論的に示すことができた．また本結果を実験と比較することで，加工中に生じる熱のために大きく加工分解能が低下することが分かった．以上の結果から，光のエネルギーを効率よく重合反応へ変換する重合開始剤を用いると高い加工分解能が実現できると結論した．

#### 5．スプープラズモニックデバイスの作製（田中，武安\*1，藤川，久保，小泉）

金属の表面にナノスケールの凹凸構造を加工することで，THz波のような低周波数な電磁場に対しても，擬似的に表面プラズモンを励起することが可能となる．この構造をウェットリソグラフィ法で試作し，その特性を分光スペクトルを測定することで評価した．また実験と平行して，RCWA(Rigorous Coupled Wave Analysis)法を用いて，金属ナノ凹凸構造の電磁気学的特性を求め，構造の最適化を行った．

-----

#### Key Sentence :

1. Create novel optical functional materials using nano-scale metal structure
2. High capacity data storage by metal nano particle contained materials
3. Three-dimensional laser nanofabrication using two-photon absorption process

#### Key Word :

Metamaterials, Plasmonics, Nanophotonics, Optical Memory, Optical Measurement, Photofabrication, Optical recording

#### Purpose of Research

In the past, it has been believed that the electro-magnetic properties of materials 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. 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. This technology 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. We collectively call these kind of artificial materials - "metamaterials". We will also extend the application of metamaterial to develop novel and functional optical devices that will open a new door for photonic technologies.

#### 1 . Plasmonic Metamaterials (Tanaka, Nakano, and Takeyasu)

As a high throughput production technique for fabricating nano-scale metal structures of metamaterials, we examined nano-imprint method. Glass molds are fabricated by using reactive ion etching (RIE) and UV laser interference lithography technique. The glass mold was pressed into the softened PMMA film spincoated on another piece of slide glass under 20Pa and 150 degree centigrade. After the mold was separated from the PMMA film, gold thin film of 100nm in thickness was sputtered

on the surface of PMMA film to make nano patterned gold surface structures. In the experiment, 5mm x 5mm large nano-structures were fabricated by one time nanoimprinting. Optical properties of the fabricated sample was evaluated by the infrared spectrum taken by FT-IR, and anomalous absorption line that was originated in nano-scale metal structure was observed in 50THz region.

## **2. Three-dimensional optical data storage (Tanaka and Suzuki)**

We developed multilayered optical disk which has 10 recording layers stacked on the glass substrate. As the recording material, rhodamine-B and Au(III)-ions doped PMMA material was used. We recorded bit-data onto the multi-layered 3D disk by using two-photon techniques and readout them by confocal readout techniques. We tried dynamic recording/reading test using rotating disk and examined the cross-talks between adjacent recording layers, three-dimensional recording densities, and signal intensity dependences to the recording layer position.

## **3. Two-photon reduction for fabricating three-dimensional micro/nano metal structures (Tanaka, Takeyasu, Yaoyu, Nakayama, Nakano, Duan, Kawata)**

We tried to improve the spatial resolution of the two-photon reduction technique which uses a femto-second ultra-short pulse laser as a light source. In the conventional system, when a high-intensity Ti:Sapphire laser is focused into a silver nitrate aqueous solution, nano-scale silver crystals are created in the focused laser beam spot. Even after stopping the laser irradiation, the created silver nano-crystals grow and become sub-micron size silver particles, and the size of silver particles determines the final spatial resolution. We tried to decrease the size of the silver crystals by inhibiting their growing process in order to improve the spatial resolution. We added the surfactant molecules which adhere to the silver surface to silver nitrate aqueous solution. From the experimental results, we succeeded in realizing 120nm resolution that exceeds the diffraction limit of the focused laser beam spot.

## **4. Numerical analysis of spatial resolution in two-photon induced polymerization (Takeyasu, Tanaka, and Kawata)**

Ultraviolet photo-polymerizable resin is polymerized through two-photon absorption process at the focusing fs laser beam spot. A model for two-photon induced polymerization was proposed with the consideration of elemental reactions included in the polymerization process. Based on the model, the laser power threshold and the minimum voxel size were calculated. The calculation results were compared with the experimental results, and heat generation during the fabrication may lead to lower fabrication resolution. From this point of view, the photo-initiators with the higher conversion efficiency from light to polymerization may be essential for higher fabrication resolution.

## **5. Spoof Plasmonic Device (Tanaka, Takeyasu, Fujikawa, Kubo, and Koizumi)**

When we fabricate nanometer scale surface relief structures on the metal surface, surface plasmon like surface wave can be created there. This surface plasmon like waves are termed "spoof plasmon" or "mimicking plasmon". We fabricated metal surface relief structures by using wet lithography method, and the optical properties of structures were investigated with a infrared spectrometer. In addition, we also investigated electro-magnetic properties of metal nano relief structures by using Rigorous Coupled Wave Analysis (RCWA) method for optimizing the structures.

*Head*

田中 拓男

Takuo Tanaka