

## 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 $\text{VO}_2$ の絶縁体-金属相転移の低温誘起 (田中)

二酸化バナジウム ( $\text{VO}_2$ ) は、温度変化によって絶縁体相と金属相との間で相変化を起こす物質である。本研究室では、表面プラズモン共鳴に伴う電場増強効果を利用して、この  $\text{VO}_2$  の相転移温度を変化させる研究を行っている。具体的には、金ナノロッドアレイ構造が  $\text{VO}_2$  薄膜に埋め込まれた材料を試作し、金ナノロッドに局在表面プラズモンを励起して、 $\text{VO}_2$  薄膜の赤外透過スペクトルを測定し、その相変化温度の変化を評価した。その結果、表面プラズモンを励起しながら相転移温度の測定を行うと、プラズモンを励起しない場合と比べて  $\text{VO}_2$  薄膜の相変化温度が約  $3^\circ\text{C}$  低下することを確認した。

#### 2. 湾曲金ナノロッド構造の光化学反応への応用 (横田, 田中)

金属ナノ構造近傍では高い光電場増強効果が誘起されることから、プラズモン共鳴を利用した局所空間で選択的かつ高効率な光化学反応場の構築を目指している。これまでに湾曲金ナノロッドと直線ナノロッドを近接させたハイブリッド金ナノ構造を作製し、形状と配置に起因する特異なプラズモン共鳴ピークが得られることを明らかにした。そこで可視光域にプラズモン共鳴ピークを有するハイブリッド金ナノ構造をマイクロ流路内に作製する手法を確立し、マイクロ流路内に封入した色素分子の吸収スペクトル経時変化から、分子の挙動を追った。ハイブリッド構造の最適化と種々の分子を用いた経時吸収スペクトルの計測し、ハイブリッド金ナノ構造の最適化を行っている。

#### 3. アルミニウム・プラズモニックメタサーフェースを用いた構造発色に関する研究 (Mudachathi, 田中)

本研究では、アルミニウム製のナノ構造体に励起される表面プラズモンを利用してフルカラーに発色する二次元構造を作製することを目的としている。大きさの異なるアルミニウムのナノ正方形パッチ構造を二次元格子状に配列させた構造を用いて、反射光にどのような発色が起こるかの実験を行った。特にインコヒーレントな光の照射だけで、線幅の狭い発色が観測できる構造を検討した。この狭帯域の発色はプラズモン構造の Fano 共鳴に起因するもので、その特性は反射スペクトルを測定しその反射ピークの線幅の半値全幅を測定することで評価した。ナノ構造は、電子線ビームリソグラフィー法によってパターンニングし、これに膜厚 45nm のアルミニウムを真空蒸着法で塗布することにより作製した。実験の結果、正方形パッチ構造のサイズを変化させることにより、パッチのサイズに比例して紫から赤色までの全ての色を発色させることに成功した。

#### 4. 近赤外～遠赤外域における波長可変完全吸収体 (Mudachathi, 田中)

三次元メタマテリアル構造を利用して、近赤外～遠赤外域で動作する等方性を有する完全吸収体について研究を行っている。電子線ビームリソグラフィー法や反応性イオンエッチング法、リフトオフ法などを利用して、金属ミラー構造の上に犠牲層でもある透明なSiN薄膜を介して三次元メタマテリアル構造が装荷された構造を作製した。特に加工プロセスの中に金属薄膜の残留応力を利用して立体的な三次元メタ分子構造が自己組織的に形成されるメカニズムを持ち込むことで、THz波領域で動作するメタ原子を大量に作製することに成功した。現在、同じ手法を利用してさらに構造サイズを縮小し、動作周波数を高波周波数化に挑戦している。そしてさらなる次のステップとして、静電力を利用して三次元メタ原子の構造を変形させ、完全吸収体の動作周波数(波長)をチューニングできる手法の検討を進めている。

#### 5. ファノ共鳴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)

ファノ共鳴メタマテリアルのプラズモニックモードと有機分子薄膜の赤外振動モードとの共鳴結合に基づく、高感度な表面増強赤外分光法の開発に取り組んだ。ファノ共鳴メタマテリアルは、Au 金属ナノ構造が Si 基板上に 2 次元アレイ化された構造をしており、これを電子ビーム露光、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=O 基の伸縮モードが存在する中赤外領域 ( $\sim 1750\text{cm}^{-1}$ ) においてファノ共鳴に起因する特異な赤外スペクトルを観測した。検出分子には、C=O 基を含む polymethyl methacrylate (PMMA) を用い、基板上に厚み 50 nm のスピコートを行った。表面増強赤外分光実験では、メタマテリアルのファノ共鳴に伴うプラズモン吸収線内に、C=O 伸縮モードが明瞭な共鳴反射ピークとして観測できた。メタマテリアル構造の集積度や PMMA 濃度から算出した検出感度は、約 100 アトモレベルであった。

#### 6. HfS<sub>2</sub> 原子薄膜を用いた低電力電界効果トランジスタの作製 (雨宮, 石川, 田中)

遷移金属ダイカルコゲナイドの中でも、高い電子移動度 ( $\sim 1800\text{ cm}^2/\text{Vs}$ ) と光通信応用に有用なバンドギャップ ( $\sim 1.2\text{ eV}$ ) を有する HfS<sub>2</sub> 原子薄膜を用いた低電力電界効果トランジスタの作製に取り組んだ。実験ではまず、厚み 285 nm の熱酸化膜を有する p+-Si 基板上にスコッチテープによる機械的剥離法を用いて、HfS<sub>2</sub> の成膜を行った。AFM を用いた段差測定および顕微ラマン分光計測の結果、原子数層からなる HfS<sub>2</sub> 原子薄膜であることを確認した。次に、得られた HfS<sub>2</sub> 原子薄膜をチャネルとするバックゲート FET を作製し、その電子特性を評価した。ゲート電圧印加によるドレイン電流の明瞭な変調動作が確認され、最大電流  $0.2\mu\text{A}/\mu\text{m}$  および 104 以上の on/off 比が得られた。

#### 7. ボトムアップ的手法によるプラズモニック・ダイマー構造の作製 (武安, 田中)

金属ナノ構造の光学特性は、金属の種類だけではなく、そのサイズや形状にも依存するため、形状をデザインすることで、より高度な機能を持つ光学材料を創り出すことができる。本研究は、ボトムアップ的手法を用いた金ナノ粒子 2 量体 (プラズモニック・ダイマー) の高選択的大量合成を目的とする。今年度は、Langmuir-Blodgett 膜を利用して、金ナノ粒子表面の 1 点だけが疎水修飾されたパッチナノ粒子を大量に作製した。作製したパッチナノ粒子をエタノール溶液中に分散させると、紫色の溶液が得られた。その溶液の消光スペクトルを計測することにより、元来金ナノ粒子が持つピークに加え、金ナノ粒子同士が結合したと考えられるピークを観測することができた。

-----  
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

**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. Plasmonic modification insulator-metal transition temperature of VO<sub>2</sub> (Tanaka)**

Vanadium dioxide (VO<sub>2</sub>) is a phase transition material that changes its phase between insulator and metal. In this research, we are studying artificial modification of the phase transition temperature of VO<sub>2</sub> by using light field enhancement of the surface plasmon (SP) resonance. We embedded gold nanorod array into VO<sub>2</sub> thin film, and investigated its IR transmission spectra under the SP resonances excited by linearly polarized IR irradiation. We measured the phase transition temperature from the IR spectra and found that under the SP resonant condition the phase change temperature has changed 3 degree lower than that without SP resonance.

**2. Development of Highly Selective Photochemical Reaction Fields with Gold Hybrid Nanostructures (Yokota, Tanaka)**

We are aimed for the new photochemical reaction site of the selective and high efficiency at the local space with gold hybrid nanostructures by using local-mode surface plasmon resonances. The gold hybrid nanostructures composed of curvilinear nanorod and straight nanorod with narrow gap were fabricated using an electron beam lithography and lift-off techniques. The gold hybrid nanostructures has a specific plasmon resonance peak owing to regulation of shapes and plane configuration. We developed the technique to fabricate hybrid gold nanostructures with a plasmon resonance peak in the visible resin in a micro fluid channel. The behavior of pigment molecules was investigated from time-dependent spectra change of the molecules. The absorption spectra using various kinds of pigment molecules were examined.

**3. Structural Colouration Based On Aluminum Plasmonic Metasurfaces (Mudachathi, Tanaka)**

The research was mainly focused on the optimization of full colour plasmonic pixels using aluminum (Al) nano structures. 2-dimensional periodic arrangement of Al nano squares of varying

size is used for the colour generation. These pixels produce intense narrow reflection peaks in the far field that could directly view without the need for a coherent light source. The narrow reflection peaks originated from the Fano like resonance of the plasmonic structures lend us to define the full width at half maximum (FWHM) of the reflected peaks as a clear figure of merit to evaluate the purity of the colours. Simply varying the pixel size linearly has produced all colours from violet to red. The sub wavelength pixels are defined by e-beam lithography on a silicon substrate using PMMA resist and 45nm thick Al thin film is deposited subsequently to produce the colours.

#### **4. Wavelength Tunable Perfect Light Absorber in the Near and Far Infrared Region of the Electromagnetic Spectrum (Mudachathi, Tanaka)**

Research is being carried on the design and fabrication of an electrostatically tunable isotropic perfect light absorber based on 3D split ring resonator (SRR) metamaterials. The fabrication process for the structures with mirror has been optimized using SiN sacrificial layer. The fabrication process includes 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 SiN layer deposited on Au on silicon substrate. The same process will be extended to the fabrication of smaller structures whose optical response is expected to be in the near infrared region of the electromagnetic spectrum. In the next step the electrostatic tunability will be incorporated by judiciously placing the SRR arms and electrodes.

#### **5. Fano-Resonant Metamaterials for Surface-Enhanced Infrared Absorption Spectroscopy (Ishikawa, Tanaka)**

A high-sensitive surface-enhanced Infrared (IR) absorption spectroscopy is experimentally demonstrated by utilizing the resonant coupling of plasmonic modes of a Fano metamaterial and IR vibrational modes of an organic thin film. The Fano-resonant metamaterial consisted of 2D array of Au nanostructures on a Si substrate and was fabricated using electron-beam lithography, electron-beam evaporation, and liftoff processes. Infrared spectrum of the metamaterial was measured by using a FT-IR to demonstrate a clear Fano resonance at  $\sim 1750 \text{ cm}^{-1}$ , which spectrally overlapped with C=O stretching vibrational modes. A 50-nm polymethyl methacrylate (PMMA) film, which contains the C=O functional group, was then used as a test molecule and coated onto the metamaterial surface. In the measurements, the C=O stretching mode was clearly observed as an anti-resonance peak within a broad plasmonic absorption of the metamaterial. Using the metamaterial structure density and the PMMA concentration, the sensitivity was estimated to be  $\sim 100$  attomole within the diffraction-limited IR beam spot in the measurement.

#### **6. A Low-Power Field Effect Transistor using An Atomically Thin HfS<sub>2</sub> film (Amemiya, Ishikawa, Tanaka)**

HfS<sub>2</sub> is one of the most promising transition metal dichalcogenide materials, that has high electron mobility ( $\sim 1800 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ) and appropriate bandgap ( $\sim 1.2 \text{ eV}$ ) for optoelectronics device applications. In this work, a field effect transistor (FET) using an atomically thin HfS<sub>2</sub> film was fabricated and characterized. In the fabrication, micromechanical exfoliation using scotch tape was employed to form HfS<sub>2</sub> flakes onto a p+-Si substrate with a 285-nm thermally oxidized film. AFM and micro-Raman measurements revealed that the flakes consisted of a few atomic layers of HfS<sub>2</sub>. A back-gate few-layer HfS<sub>2</sub> transistor was then fabricated to investigate the I-V characteristics. A typical FET operation was clearly observed by applying the back-gate voltage, and the maximum drain current of  $0.2 \mu\text{A}/\mu\text{m}$  and the on/off ratio more than 10<sup>4</sup> was obtained.

#### **7. Fabrication of Plasmonic Dimer Structures with Bottom-up Approach (Takeyasu, Tanaka)**

Optical property of metallic nano-structures depends on not only sort of the metal but also their size and shape. More sophisticated optical functional materials can be created by designing the shape. In this research, we aimed at highly selective fabrication of gold nano-particle dimer structures with the bottom-up approach. In this fiscal year, we fabricated patchy gold nano-particles, where the surface of the nano-particle is partially decorated with hydrophilic molecules. The patchy gold nano-particles were dispersed in ethanol, which resulted in change of color from red to purple. The extinction spectrum was measured, and the extinction peak due to assembly of the gold nano-particles was observed additionally to the original peak of the gold nano-particles.



***Principal Investigator***

田中 拓男      Takuo Tanaka

***Research Staff***

横田 幸恵      Yukie Yokota

ムダチャティ   レニルクマール      Renilkumar Mudachathi

***Assistant and Part-timer***

栗野 佳子      Keiko Awano

田邊 伸子      Nobuko Tanabe

細川 歩      Ayumi Hosokawa

***Students***

小形 陽介      Yosuke Ogata

藤原 太郎      Taro Fujiwara

津賀 尚史      Hisafumi Tsuga

大野 貴士      Takashi Ohno

和田 拓晃      Hiroaki Wada

池上 志穂      Shiho Ikegami

松方 妙子      Taeko Matsukata

***Visiting Members***

石川 篤      Atsushi Ishikawa

武安 伸幸      Nobuyuki Takeyasu

久保 若奈      Wakana Kubo

雨宮 智宏      Tomohiro Amemiya

陳 哲勤      Che-Chin Chen

杉田 丈也      Tomoya Sugita

安田 慶太      Keita Yasuda

藤原 正樹      Masaki Fujiwara