

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：11301

研究種目：新学術領域研究（研究領域提案型）

研究期間：2010～2014

課題番号：22109005

研究課題名（和文）周期構造を利用した光メタマテリアルの作製と物理

研究課題名（英文）Fabrication and physics of periodic metamaterials in optical regime

研究代表者

石原 照也（Ishihara, Teruya）

東北大学・理学（系）研究科（研究院）・教授

研究者番号：60168250

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 134,600,000 円

研究成果の概要（和文）：光領域の周期的なメタマテリアルを中心に、サブ波長人工構造において生じる新奇な電磁応答を実験、電磁場シミュレーション、および理論解析によって研究した。平坦な金属薄膜にサブ波長の穴や誘電体の突起をつけることにより生じる、自由空間とは異なった電磁場において発生するDC電場を種々のデザイン、条件で調べ、微視的機構の理解が深まった。トポロジー最適化を用いたメタマテリアルの最適設計についての基礎理論を完成した。金属メタマテリアルの表面に生じる光電場の微視的分布を利用した光リソグラフィーを提案した。フェライトに銅線を巻きつけたメタ分子のマイクロ波に対する巨大な磁気カイラル効果を発見し、理論的に解析した。

研究成果の概要（英文）：By means of experiments, electromagnetic field simulation and theoretical analysis, novel electromagnetic responses in sub-wavelength artificial structures have been investigated, focusing on periodic metamaterials in optical regime. Microscopic mechanism of photo-induced voltage due to optical rectification in structured thin-metallic film was clarified further after experiments of various designs and conditions. Basic theory on topology optimization for metamaterials was established. Optical lithography based on microscopic electric field distribution near the metallic metamaterial surfaces were proposed. Giant magnetochiral effect in metamolecule consisting of ferrite and copper coil was discovered experimentally in microwave region and analyzed theoretically.

研究分野：光物性

キーワード：メタマテリアル 光整流 ベリー位相 トポロジー最適化 非相反性 カイラル 周期多重極境界要素
法 光リソグラフィー

1. 研究開始当初の背景

通常光は物質と相互作用するとき、その電場成分のみが関与する。しかし、その磁場成分とも相互作用するような状況が実現できて誘電率と透磁率が同時に負であるとき、位相の方向とエネルギー伝播方向が逆向きになるような伝播波が存在する。このような状況は電磁波の波長よりもある程度小さく、しかし小さすぎないスケールで回転電流を生じさせることで可能となるが、このような構造は熱平衡状態で自己組織的に形成することはできないため、人工的に構造を作製することが必要となる。光領域においては波長が数100nmであるため、サブ波長構造のスケールは10nm程度となり、超微細加工技術が発達した現在でもその作製はチャレンジングである。本研究では、メンバーのこれまでの研究で明らかになってきている新現象と理論的アイデアを出発点に、正確かつ高速の電磁場計算によるデザインとシミュレーション、超高品質の試料作製技術、実験的検証により、周期構造をベースとしたメタマテリアルの理解と新機能発見をめざす。

2. 研究の目的

本計画研究では光領域のサブ波長周期構造をうまくデザインした「新物質」を作製し、負の屈折率をはじめとする新奇な現象の物理を探索し、その機能の応用をねらうとともに、従来の物理および電気回路概念を拡張して統合し、理解する試みを行う。高精度製膜装置を完成させ、高精度超微細加工技術と組みあわせて、高速数値計算により設計した広帯域、低損失の負屈折メタマテリアルを作製する。偏光の自由度を用いたメタマテリアル応答に注目し、横光起電力をプローブとした測定により、メタマテリアル内部のマイクロな電磁場分布と起電力などの巨視的な応答との関係を探る。電磁場波動関数から得られる一般化されたベリー位相の概念を用いることにより、自然界の物質で発現する他の現象との共通の理解を試みる。サブ波長光表面プラズモンリソグラフィの技術を発展させ、種々の光メタマテリアルを簡便に作製する技術を確立し、応用を視野にいれた基礎研究を行う。

3. 研究の方法

光領域のメタマテリアルの作製には主として本研究費で導入した多層膜作製装置を用い、極めて平坦な金属膜、誘電体膜の作製条件を見出す。膜の成長に際しては、エリプソメトリを利用した実時間モニタを行う。作製した多層膜メタマテリアルは電子線描画装置によって、ダブルフィッシュネット構造などにパターン化し、西村らの数値計算の結果と比較する。金属ナノ構造の対称性を考慮したデザインでメタマテリアルにおける光励起ダイナミクスを調べる。ベリー曲率に関

連した光起電力の測定を行う。石原はメタマテリアル領域の構造パラメータをもつダブルフィッシュネットに対して光起電力測定を行い、西村の数値計算と小野田の理論的な考察の協力のもとに円偏光誘起横起電力の理解を深める。西村はまた飯盛とともに、電磁場の数値計算の効率化を図る。阪大の萩行グループと共同して、テラヘルツ領域のカイラルメタマテリアルおよび、差周波数発生を利用したTHz発生メタマテリアルを開発する。またメタマテリアル領域の光起電力とベリー位相の対応を見出すべく、石原は小野田、澤田と協力して解明をすすめる。富田と澤田はカイラル構造における非相反応答を解明する。また東北大では金属表面に生じる微細な電場分布を利用した光リソグラフィーを開発する。

4. 研究成果

1) 種々のメタマテリアルを設計、作製し、光整流をはじめとする、光学応答を探索した。

①電子線描画装置を用いて、金属薄膜にサブ波長構造をもつ系を設計し、光起電力の入射角度依存性、偏光依存性、波長依存性を実験的に調べ、数値計算と比較し、微視的な機構を考察した。この効果はエレクトロニクスとナノ光学を結ぶ重要な技術となりうる。

②イオンビームスパッタ装置の薄膜成長を実時間観察するための、四検光子ポラリメトリとその解析プログラムを開発した。

③大面積の試料による光起電力実験を行うため、金薄膜にサブ波長の孔がランダムに開いたナノポーラスゴールド(NPG)を作成し、同様の実験を行なった。周期的な構造でなくても、明確な偏光依存性があること、興味深い波長依存性を示すことを見出した。

④周期構造をもった金属薄膜に生じる微視的な光電場の構造を利用した光ナノリソグラフィーを提案し、数値計算と比較して、実証した。

⑤準周期金属誘電体多層膜メタマテリアル上に配置した量子ドットの発光寿命が有意に短くなる現象を見出し、解析した。

⑥プロジェクトの縮小露光を利用した光リソグラフィで作製したメタマテリアルをテラヘルツ時間分解分光で測定し、共鳴応答を確認した。

⑦金属薄膜の上に歪んだ誘電体グレーティングを配置することにより、ベリー位相に由来すると考えられる光起電力を見出した。

⑧金属薄膜上に誘電体薄膜を介して配置した三角形の金属板正方配列によって、磁気共鳴の基づく光起電力の波長依存性を理論的に解析した。

2) 周期多重極境界要素法を用いた電磁場数値計算を利用して、メタマテリアルを研究した。

①ダブルフィッシュネット構造の負の屈折

率の性能係数を最大にするような構造パラメタを決定した。

②トポロジー最適化を用いたメタマテリアルの最適設計について基礎理論を完成させ、開口部を有する金の薄膜の透過係数最大化、吸収最大化などの数値計算を行った。

③NPG のモデルを作製して横起電力のシミュレーションを行い、実験との定性的な一致を見た。

3) トポロジカルな性質に注目して、渦状態の人工構造における振る舞いを調べた。

①周期構造中の光渦および光エッジモードを解析し、トポロジカル光波束の可能性を検討した。

②トポロジカル絶縁体界面における電子波束ダイナミクスに関する理論解析を踏まえ、多重ボルテックス光波束に関する生成可能性と安定性に関する研究を進めた。

③界面モードの解析解が存在するトポロジカル絶縁体模型の探索や界面モード同士の混成に関するシミュレーションを行った。

4) カイラルな性質をもつメタマテリアルを実験的に探索し、新奇現象を見出した。

①グルコースとローダミンの複合膜がカイラルメタ表面として振る舞うことを実験的に示した。

②フェライトに銅線コイルを巻いたメタ分子を用いたマイクロ波領域での磁気カイラル効果の測定を行った。その結果、200mT の静磁場を加えると、共鳴的光学活性の周波数(約 10GHz)で、表と裏の屈折率差にして、10 の⁻³乗から⁻²乗という巨大な磁気カイラル効果が得られた。

5) カイラル性に由来するメタマテリアルの新奇現象、ベリ一位相に関連した新奇現象を理論的に解析した。

① 1)⑦、4)①、4)②の実験に関して理論的な解析を行った。

③ 中でのカイラル性の発現、右手/左手系複合線路におけるベリ一位相を計算し、境界面の束縛状態との関連性を調べた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 24 件)

1. Qiang Bai, "Manipulating photoinduced voltage in metasurface with circularly polarized light" *Optics Express* 23, 5348-5356 (2015). 査読有
2. Marjan Akbari, Masaru Onoda and Teruya Ishihara, "Photo-induced voltage in nano-porous gold thin film," *Optics Express* 23, 823-832 (2015). 査読有
3. Kanta Kusaka, Hiroyuki Kurosawa, Seigo Ohno, Yozaburo Sakaki, Kazuyuki Nakayama, Yuto Moritake, and Teruya Ishihara, "Waveguide-mode interference lithography technique for high contrast subwavelength structures in the visible region," *Optics Express* 22, 18748-18756 (2014). 査読有
4. Yuto Moritake, Kazuyuki Nakayama, Toshihiro Suzuki, Hiroyuki Kurosawa, Toshiyuki Kodama, Satoshi Tomita, Hisao Yanagi, Teruya Ishihara, "Lifetime reduction of a quantum emitter with quasi-periodic metamaterials," *Physical Review B* 90, 075146: 1-6 (2014). 査読有
5. K. Tamasaku, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Katayama, K. Sawada, H. Yumoto, H. Ohashi, H. Mimura, M. Yabashi, K. Yamauchi and T. Ishikawa, "X-ray two-photon absorption competing against single and sequential multiphoton processes," *Nature Photonics* 8, 313 (2014). 査読有
6. 松本安弘, 新納和樹, 西村直志 "H 行列演算を用いた 2 次元 Helmholtz 方程式の 1 周期境界値問題の高速直接解法について," *計算数理工学論文集* 14, 79084 (2014). 査読有
7. 野瀬大一郎, 新納和樹, 西村直志, "周期単位の一部に欠陥を有する領域における 2 次元 Helmholtz 方程式の境界値問題の数値解法について," *計算数理工学論文集* 14, 85-90 (2014). 査読有
8. 野瀬大一郎, 西村直志, "2 次元 Helmholtz 方程式の周期境界値問題に現れる固有値問題に対する Sakurai-Sugiura 法と周期多重極法を用いた数値計算," *日本応用数学会論文誌* 24, 185-201 (2014). 査読有
9. Y. Tanaka, T. Nakatani, R. Onitsuka, K. Sawada and T. Takahashi, "Controlling X-ray beam trajectory with a flexible hollow glass fibre," *J. Synchrotron Radiation* 21, 61 (2014). 査読有
10. Satoshi Tomita, Kei Sawada, Andrey Porokhnyuk, Tetsuya Ueda, "Direct Observation of Magnetochiral Effects through a Single Metamolecule in Microwave Regions," *Physical Review Letters* 113, 235501: 1-5 (2014). 査読有
11. H. Suo, K. Takano, S. Ohno, H. Kurosawa, K. Nakayama, T. Ishihara and M. Hangyo, "Polarization property of terahertz wave emission from gammadion-type photoconductive antennas," *APPLIED PHYSICS LETTERS* 103, 111106:1-4 (2013). 査読有
12. 新納和樹, 西村直志, "Maxwell 方程式に対する PMCHWT 定式化における Hdiv 内

- 積を用いた離散化について,” 計算数理工学論文集 13, 79-84 (2013). 査読有
13. S. Tomita, Y. Kosaka, H. Yanagi and K. Sawada, “Chiral meta-interface: Polarity reversal of ellipticity through double layers consisting of transparent chiral and absorptive achiral media,” *Phys. Rev. B* 87, 041404(R) (2013). 査読有
 14. Y. Kohmura, K. Sawada, S. Fukatsu and T. Ishikawa, “Controlling the Propagation of X-ray Waves inside a Heteroepitaxial Crystal Containing Quantum Dots Using Berry’s Phase,” *Physical Review Letters* 110, 057402 (2013). 査読有
 15. M. Onoda, “Implementation of Unitary Algorithm in the Analysis of Quantum Dynamics at the Interface between a Topological Insulator and a Conductor,” *Proc. Of SICE Ann. Conf.* 2012, 376-381 (2012). 査読有
 16. Y. Ohmura, T. Shimokawa, S. Hosaka and M. Onoda, “Spin-dynamics of a Quantum Wave-packet via Helical Edge States and Spin-filter Effect,” *Proc. Of SICE Ann. Conf.* 2012, 1044-1049 (2012). 査読有
 17. K. Hayashi and T. Takemura and M. Onoda, “Numerical Analysis of Spin-filter Effect of Optical Tornadoes and Chiral Edge States in Two-dimensional Photonic Crystal Waveguides,” *Proc. Of SICE Ann. Conf.* 2012, 1050-1055 (2012). 査読有
 18. D. Maryenko, J. Falson, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Onoda, H. Aoki, M. Kawasaki, “Temperature Dependent Magnetotransport around $\nu=1/2$ in ZnO Heterostructures,” *Physical Review Letters* 108, 186803: 1-5 (2012). 査読有
 19. 小野田勝, “光の幾何学的ホール効果その物理増と展望,” *0 plus E* 35, 725-732 (2013).
 20. H. Kurosawa, T. Ishihara, N. Ikeda, D. Tsuya, M. Ochiai and Y. Sugimoto, “Optical rectification effect due to surface plasmon polaritons at normal incidence in a nondiffraction regime,” *Optics Letters* 37, 2793-2795 (2012). 査読有
 21. H. Kurosawa and T. Ishihara, “Surface plasmon drag effect in a dielectrically modulated metallic thin film,” *Optics Express* 20, 1561-1574 (2012). 査読有
 22. M. Kobayashi, S. Tomita, K. Sawada, K. Shiba and H. Yanagi, “Chiral meta-molecules consisting of gold nanoparticles and genetically engineered tobacco mosaic virus,” *Physica status solidi (c)* 9, 2529-2532 (2012). 査読有
 23. W. Wang and N. Nishimura, “Calculation of shape derivatives with periodic fast multipole method with application to shape optimization of metamaterials,” *Progress In Electromagnetics Research* 127, 49-64 (2012). 査読有
 24. 澤田桂. “時間・空間反転対称性の破れたメタマテリアルの物理,” *Bulletin of Topical Symposium of the Magnetics Society of Japan*, 180, 7-12 (2011). 査読有
- [学会発表] (計 80 件)
1. 富田知志 メタマテリアルで光を操る (招待講演), 平成 27 年 電気学会全国大会 シンポジウム 2015 年 3 月 25 日 東京都市大学・世田谷キャンパス (東京都世田谷区)
 2. Teruya Ishihara & Marjan Akbari “Linear and nonlinear optical properties of nano-porous gold,” 4th Japan-Korea Metamaterial Forum 2014 年 12 月 24 日 Osaka University (Toyonaka)
 3. Satoshi Tomita Meta-molecules with chirality and magnetism (invited), 2014 THAILAND-JAPAN MICROWAVE (TJMW2014) 28 November 2014 Bangkok (Thailand)
 4. Kei Sawada Berry phase theory of transmission line, 2014 Thailand-Japan Microwave (TJMW2014), 2014/11/28. King Mongkut’s Institute of Technology Ladkrabang (KMILT), Bangkok, Thailand,
 5. Satoshi Tomita Meta-molecules with chirality and magnetism for microwaves (invited), 2014 VIETNAM-JAPAN MICROWAVE (VJMW2014) 25 November 2014 Hanoi (Vietnam)
 6. Kei Sawada, Geometrical properties of electromagnetic waves in CRLH metamaterials, Vietnam-Japan Microwave 2014 (VJMW2014), VNU-University of Engineering and Technology, 2014/11/25. Hanoi, Vietnam
 7. Satoshi Tomita Controlling magneto-optical properties of nanocomposite magnetic materials using localized surface plasmons, Donostia International Conference on Nanoscaled Magnetism and Applications

- September 9, 2013 San Sebastian, Spain
8. Kei Sawada Fictitious magnetic effects of chiral meta-interface and Berry's phase The 3rd Korea-Japan Metamaterials Forum 2013年6月26日 Ewha Womans University, Seoul, Korea
 9. Satoshi Tomita Chiral meta-molecule and meta-interface, International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences May 27, 2013 Seattle, USA
 10. S. Tomita, "From chiral meta-molecule to chiral meta-interface," invited, Energy Materials Nanotechnology, Nov. 29, 2012, Las Vegas, NM USA).
 11. K. Sawada, "Berry phase effects on x-ray pulse propagation," The 5th International Workshop on FEL Science, Oct. 31, 2012, Gyeongju (Korea).
 12. S. Tomita, M. Kobayashi, K. Sawada, K. Shiba and H. Yanagi, "Chiral meta-molecules consisting of gold nanoparticles and genetically engineered tobacco mosaic virus," Sep. 18, 2012, Metamaterials 2012, St. Petersburg (Russia).
 13. Kurosawa and T. Ishihara, "Reversed radiation pressure effect on electrons under plasmonic resonance in a magnetic metamaterial," Sep. 20, 2012, Metamaterials 2012, St. Petersburg (Russia).
 14. T. Ishihara, "Electromagnetic response of some natural metamaterials," invited, Asia Nano, Sep. 9, 2012, Lijiang, Yunnan (China).
 15. T. Ishihara, "Transverse voltage induced by circularly polarized obliquely incident light in plasmonic crystals," invited, SPIE Optics and Photonics, Aug. 12, 2012, San Diego, CA (USA).
 16. Y. Kosaka, K. Egami, S. Tomita and H. Yanagi, "using Au Fine Particles and Riboflavin," 5th international conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Application, Jun. 4, 2012, Nara Prefectural New Public Hall, Nara (Japan).
 17. M. Onoda, "A perspective on spinning modes in topological photonic media," 2nd Japan-Korea Metamaterial Forum, Jun. 29, 2012, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba (Japan).
 18. 西村直志 メタマテリアルの形状最適化, ワークショップ「連続体力学の現象と数理 II」2012年2月21日 九州大学
 19. 西村直志 周期多重極法によるメタマテリアルのシミュレーション, 応用物理学会 シンポジウム 2012年2月21日 早稲田大学
 20. 澤田桂 時間・空間反転対称性の破れたメタマテリアルの物理, 日本磁気学会第180回研究会 2011年10月21日 中央大学駿河台記念館
 21. Kei Sawada Berry-phase effects on x-ray dynamical scattering, The 4th Workshop on FEL Science 2011年9月1日 Peppers Beach Club, Cairns, Australia
 22. Kei Sawada Berry Phase to dynamical theory - Theory to practical photon handling, Three-way Meeting 2012 and Associated Optics Workshop 2012年1月30日 ESRF, Grenoble, France
 23. T. Ishihara, H. Kurosawa, T. Hatano, Y. Kurami and N. Nishimura Longitudinal and Transverse Photo-Induced Voltage in Metallic Photonic Crystal Slabs (invited), Japan-Korea Metamaterial Forum, Seoul 2011年7月8日 Ewha Womans University, Seoul, Korea
 24. H. Kurosawa, S. Ohno, T. Ishihara Optical rectification in dielectrically modulated metallic thin film, Japan-Korea Metamaterial Forum, Seoul 2011年7月8日 Ewha Womans University, Seoul, Korea
 25. Seigo Ohno, Tomoaki Ida, Masahiko Shingu, Hiroyuki Kurosawa, Hiroaki Minamide, and Teruya Ishihara Maskless exposure system toward fabrication of THz metamaterials (invited), 1st Korea-Japan Metamaterials Forum 2011 2011年7月7日 Ewha Womans University, Seoul, Korea
 26. T. Hatano, H. Kurosawa, T. Ishihara, Y. Kurami and N. Nishimura Optical rectification in plasmonic crystals (invited), Surface Plasmon Photonics 5, 2011年5月9日 BEXCO, Busan, Korea
 27. 石原照也, 周期構造を利用した光メタマテリアルの作製と制御 (招待講演), 2011年3月24日、神奈川大学
 28. Kei Sawada Enhanced translation of x-rays by a Berry-phase effect, The 41st Winter Colloquium on the PHYSICS of QUANTUM ELECTRONICS 2011年1月4日 Snowbird, Utah, USA
 29. Kei Sawada Berry-phase theory of x-ray dynamical diffraction, The 3rd Workshop on FEL Science 2010年

- 10月6日 Hokkaido
30. Aunuddin S. Vioktalamo, Seigo Ohno, Ryosuke Watanabe, and Teruya Ishihara, "Permeability Enhancement of Stratified Metal-Dielectric Metamaterials in Optical Regime," International Conference on Photonic and Electromagnetic Crystal Structures (PECS) IX 2010年9月28日 Granada, Spain
31. H. Kurosawa, T. Hatano, N. Ikeda, D. Tsuya, M. Ochiai, Y. Sugimoto and T. Ishihara Optical rectification effect at normal incidence in asymmetric metamaterial, Metamaterials2010 2010年9月16日 Karlsruhe, Germany

〔図書〕(計2件)

石原照也、真田篤志、梶川浩太郎 監修、シーエムシー出版 「メタマテリアル I I」 2012年 278 ページ

(石原照也 第1章「メタマテリアルの物理的基礎」、西村直志 第5章「周期多重極境界要素法による電磁場解析」、富田知志 大14章「金属ナノ構造との複合体を用いたメタマテリアル」)。

「最新 マイクロ波エネルギーと応用技術」最新 マイクロ波エネルギーと応用技術 編集委員会 編

10.3.1 (p931-936) "メタマテリアル" 富田知志

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計1件)

名称：リソグラフィーマスクおよび表面プラズモンを用いた光リソグラフィーマスク
発明者：羅先剛、石原照也
権利者：理化学研究所
種類：特許
番号：第4572406号
出願年月日：平成16年11月18日
取得年月日：平成22年8月27日
国内外の別：国内

〔その他〕

プレスリリース

「半導体結晶を通過するX線が2方向に分岐する現象を発見」

http://www.riken.jp/pr/press/2013/20130131_1/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石原 照也 (ISHIHARA, Teruya)
東北大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：60168250

(2) 研究分担者

西村 直志 (NISHIMURA, Naoshi)
京都大学・大学院情報学研究科・教授
研究者番号：90127118

小野田 勝 (ONODA, Masaru)
秋田大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：80425727

富田 知志 (TOMITA, Satoshi)
奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・助教
研究者番号：90360594

澤田 桂 (SAWADA, Kei)
独立行政法人理化学研究所・放射光科学総合研究センター・特別研究員
研究者番号：40462692

大野 誠吾 (OHNO, Seigo)
東北大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号：70435634

中山 和之 (NAKAYAMA, Kazuyuki)
東北大学・高等教育開発推進センター・助教
研究者番号：80602721

新納 和樹 (NIINO, Kazuki)
京都大学・大学院情報学研究科・助教
研究者番号：10728182

松原 正和 (MATSUBARA, Masakazu)
東北大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：50450648

(3) 連携研究者

津留 俊英 (TSURU, Toshihide)
東北大学・多元物質科学研究所・助教
研究者番号：30306526

(4) 研究協力者

王 武 (WANG, Wu)
京都大学・大学院情報学研究科・博士研究員

飯盛 浩司 (ISAKARI, Hiroshi)
京都大学・大学院情報学研究科・博士研究員

新納 和樹 (NIINO, Kazuki)
京都大学・大学院情報学研究科・博士研究員

白 強 (BAI, Qiang)
東北大学・大学院理学研究科・博士研究員