

平成22年6月22日現在

研究種目：若手研究 (B)  
 研究期間：2007 ～ 2009  
 課題番号：19710081  
 研究課題名 (和文) 金属/誘電体極薄膜多層系メタ物質を用いた可視光域でのサブ波長イメージングの実現  
 研究課題名 (英文) Realization of subwavelength imaging in the visible light region using multi-layer metamaterials consisting of metal and dielectric ultra-thin films  
 研究代表者  
 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

研究成果の概要 (和文) : Al/MgF<sub>2</sub>、またはAg/SiO<sub>2</sub>の極薄膜多層系メタ物質を作製した。全反射減衰/共鳴光トンネル法を用いて、金属膜での表面プラズモンポラリトンを用いた光の輸送を実験的に調べた。Ag/SiO<sub>2</sub>の多層系メタ物質の方が、損失が小さく、光の輸送効率が高いことが明らかになった。またAg/SiO<sub>2</sub>/AgのMIM構造を調べた結果、このような系に特異的な導波モードを介した共鳴光輸送があることを明らかにした。

研究成果の概要 (英文) : Multi-layer metamaterials consisting of Al and MgF<sub>2</sub> layers or Ag and SiO<sub>2</sub> layers have been prepared. Photon transport via coupled surface plasmon polaritons in the metamaterials has been studied experimentally using an attenuated total reflection and resonant photon tunneling measurement system. We found that Ag-SiO<sub>2</sub> metamaterials have a lower intrinsic loss in comparison with Al-MgF<sub>2</sub> metamaterials. Moreover, we revealed that MIM structures consisting of Ag and SiO<sub>2</sub> convey photons resonantly via a characteristic guided mode.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,400,000	0	1,400,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,200,000	540,000	3,740,000

研究分野：ナノ物質科学

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・ナノ構造科学

キーワード：メタマテリアル、ナノ光学、サブ波長イメージング、金属誘電体多層薄膜、表面プラズモンポラリトン、導波モード、光の共鳴伝送、光リソグラフィ

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 古典光学において光は波長程度にしか集光できないことが、19世紀にAbbeによっ

て示されている。これが光の回折限界であり、結果として光学顕微鏡の分解能は波長程度となる。近年の電子デバイスの微細化やナノ物理への興味への高まりから、光を用いて回

折限界を打ち破り、サブ波長領域へアプローチすることが要求されている。このような要求に対して、原子間力顕微鏡 (AFM) のカンチレバーや光ファイバなどのプローブを用いた、走査型近接場光顕微鏡 (SNOM) による近接場光学が果たした貢献は大きい。しかし、現状で得られる SNOM の像は、文字通りプローブを走査することによる局所的な像の組み合わせであり、近接場光学の今後の更なる発展・応用のためには、サブ波長の分解能を持つ 2 次元、3 次元での一括イメージング (像転送) を可能にすることが求められる。このような技術は、サブ波長イメージングデバイスを実現し、超高解像度フォトリソグラフィ、超高密度光記録、生物試料の時間分解イメージングなど様々な応用への道を開くと期待される。

(2) 研究代表者はこれまでナノ物質と、可視光やマイクロ波など電磁波との相互作用について研究を行ってきた。特に、可視光領域で金属ナノ構造に特有な表面プラズモンについて精力的に研究を行い、ナノ粒子の局在プラズモンによる磁気光学特性の変調の観測 [*S. Tomita et al., Phys. Rev. Lett.* 2006]、有効媒質理論を用いて、炭素ナノ粒子の紫外・可視光の吸収・散乱の起源解明 [*S. Tomita et al., ApJ* 2004, *Phys. Rev. B* 2002] などの成果を収めてきた。更に、薄膜における電磁気共鳴についても研究を行ってきた [*S. Tomita et al., Phys. Rev. B* 2005, *J. Appl. Phys.* 2004]。これらの研究の過程で、可視光領域でのサブ波長イメージングのために、金属や誘電体の極薄膜を波長より充分小さな周期で交互積層させた、金属/誘電体極薄膜多層試料を用いる、という本研究のアイデアを着想するに至った。

(3) ある対象についての波長以下の領域の情報をもたらす近接場光 (エヴァネッセント光) は、対象から離れるに従って指数関数的に減少する。サブ波長一括イメージングのためには、この減衰を可能な限り小さくし、近接場光をより遠くまで輸送しなければならない。本研究では金属/誘電体極薄膜の界面に特有な、表面プラズモンポラリトン (SPP) の結合モードを介して、この近接場光のもつ情報を“運ぶ”、光の共鳴輸送の詳細を調べることが目的とした。波長の 1/10 以下の充分小さな構成要素を組み合わせ、自然界には存在しない物性・特性を実現する人工物質・材料はメタ物質と呼ばれる。このような観点から、本研究で対象とする試料は、金属/誘電体極薄膜多層系メタ物質と呼べる。研究代表者は既に、このようなメタ物質の研究を開始していた。アルミニウムとガラスの多層膜試料をスパッタリング装置で作製した。透過型電子顕微鏡 (TEM) による試料断面の構造解析の結果、膜厚 15nm 程度のアルミニウム

とガラスの極薄膜が交互に積層した、良質の多層膜が得られていることが明らかになった。そしてプリズムを用いた全反射減衰 (ATR) 法で、SPP の励起を確認した。これら極薄膜多層系メタ物質での光の伝播の微視的なメカニズムを解明すべく、研究を進めていた。しかし研究開始当初は、光を輸送しているのがどのようなモードか、またどのようなモードを用いることがサブ波長イメージングにはより効率的なのかは明らかでなく、さらに実際のサブ波長イメージングまでは至っていなかった。

## 2. 研究の目的

研究期間内に、金属/誘電体極薄膜多層系メタ物質を用いて可視光域でのサブ波長イメージングを実現することを目指した。そのために本研究を、(1) 実験・理論両面からの試料構造の最適化、(2) サブ波長イメージングの原理検証、(3) サブ波長イメージングの実証、という 3 つのサブテーマに分け、相互にフィードバックをかけながら、段階的に効率的に遂行した。そして将来的なサブ波長イメージングの応用に向けた基礎を固めることを目的とした。

## 3. 研究の方法

(1) ①良質 (高分解能) のサブ波長イメージングの実現のカギは、SPP の結合モードを介して、近接場光を損失させずに、いかに遠くまで運ぶかである。よってまず最適な構造を見つけ、そのような試料系での光輸送の物理を解明することが重要であった。

多層膜メタ物質試料の作製には真空蒸着法、もしくは rf マグネトロンスパッタリング法を用いた。基板は、高屈折率ガラス SFL11 を用いた。カップリング、デカップリング層の SiO<sub>2</sub> はスパッタリングで成膜した。Al/MgF<sub>2</sub> のメタ物質は、蒸着装置で作製した。Ag/SiO<sub>2</sub> のメタ物質は、スパッタリング装置で作製した。また反射測定用の標準試料として、SFL11 基板に SiO<sub>2</sub> のみを成膜した試料も作製した。試料構造を調べるために、透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察を行った。また二次イオン質量分析 (SIMS) で組成分析を行った。

②メタ物質での光の輸送は、SPP の結合モードを介した共鳴フォントンネリング (RPT) で説明できると我々は考えている。よって ATR 法を応用した、ダブルプリズム法による ATR/RPT 測定を行った。

ATR/RPT 測定の概略図を図 1 で示す。試料を SFL11 の正三角形プリズム 2 個で挟み、回転ステージに固定した。入射光は波長 633nm

のHe-Neレーザーを用いた。偏光板で $p$ 偏光、もしくは $s$ 偏光にして、入射光 $\theta_i$ で試料に第一プリズム側から照射した。 $2\theta_i$ の角度にあるSiフォトダイオードで反射率を、透過位置にあるSiフォトダイオードで透過率を測定

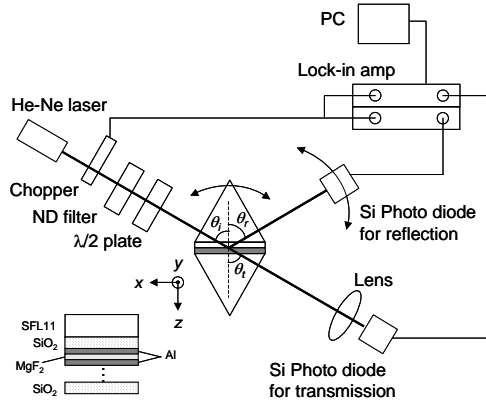


図1 ATR/RPT 測定システム

した。

SPP が励起される入射角度で  $p$  偏光を入射すると、結合 SPP を介して近接場光が輸送され、プリズムでデカップルされた光が透過（トンネル）してくるはずである。解明された光輸送の物理に基づき、よりシャープなディップを持つ ATR スペクトル、もしくはより強度の強いトンネリングを得るために最適な試料構造、即ちより損失の少なくフォトンがトンネルする試料構造、測定条件を実験的に導き出すことを試みた。

③これらの実験に対して転送行列法を用いて、光の ATR/RPT スペクトル、および試料内での電場強度プロファイルの計算を行った。計算結果と実験結果を比較することで、試料の中で SPP の結合を介した RPT が起きていることを確認する。そして、実験と計算で相互にフィードバックをかけながら、どのようなモードが光を輸送しているかを明らかにした。そしてより損失の少なく光が伝播する試料構造を明らかにすることを目指した。

(2) 次に(1)で最適化したメタ物質試料を用いて、サブ波長イメージングの原理を検証することを目指した。具体的にはメタ物質を介して、走査型近接場光顕微鏡 (SNOM) を用いたナノ構造の像の観察を計画した。その為に、基板表面に波長以下の構造 (サブ波長構造) を作製した。サブ波長構造作製には、集束イオンビーム (FIB) 加工装置を用いた。

像観察では、SNOM 中でダブルプリズムを利用して試料基板裏から伝播光を照射し、サブ波長構造に発生した近接場光を、SNOM のコレクションモードを用いてマッピングすることを目指した。長距離伝播 SPP を介した近接場光の伝播により、サブ波長構造の SNOM による像観察を目指した。

(3) 最終的にサブ波長イメージングの実証を行うことを目指した。具体的には、ナノ構造、メタ物質、フォトレジストを用いた、サブ波長一括イメージング (像転写) 実験を行うこととした。サブ波長のナノ構造を基板上に作製し、スパッタリング法を用いて極薄膜多層系メタ物質を作製する。メタ物質の表面にフォトレジストを塗布する。試料の裏から光を照射し、サブ波長一括イメージング (像転写) を行う。現像により形成された構造を AFM で観察し、サブ波長像の転写を確認する。そして超高解像度フォトリソグラフィ、超高密度光記録、生物試料の時間分解イメージングなど様々な応用を見据えて、研究を展開することを目的とした。

#### 4. 研究成果

(1) ① AlとMgF<sub>2</sub>から構成される多層膜メタマテリアルでの光輸送を調べた。基板には高屈折ガラスSFL11を用いた。SiO<sub>2</sub>のカップリング層をスパッタリング法で250nm作製した。そして、AlとMgF<sub>2</sub>の多層膜メタマテリアルを真空蒸着法で成膜した。AlとMgF<sub>2</sub>の膜厚は、共に40nmとした。金属Al層の数を $N$ とした。最後に、250nmのSiO<sub>2</sub>デカップリング層でキャップした。試料の構造は、SiO<sub>2</sub>/Al[MgF<sub>2</sub>/Al] <sub>$N-1$</sub> /SiO<sub>2</sub>で表される。

光輸送はATR/RPT測定を用いて調べた。 $p$ 偏光で得られたATR/RPTスペクトルを図2に示す。上から(a) $N=1$ 、(b) $N=2$ 、(c) $N=3$ である。

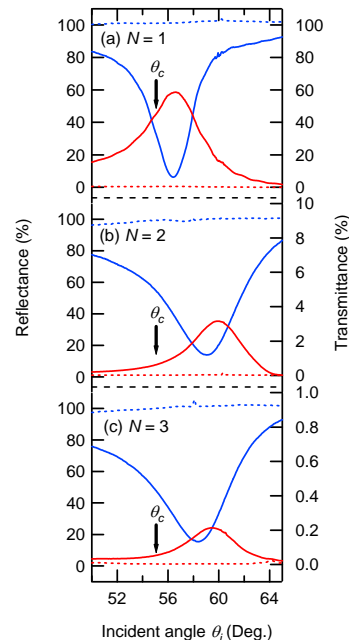


図2 Al/MgF<sub>2</sub>多層膜メタマテリアルのATR/RPTスペクトル測定結果

(a)を見ると、全反射角 $\theta_c$ 以上で反射スペクトルに落ち込み(ディップ)が見える。ここ

では結果を示さないが、*s*偏光ではこのディップは観測されない。縦波のSPPはTM波であるため、*p*偏光で得られたディップは、AlでのSPPを共鳴励起したことを示している。そしてその入射角で、透過ピークが得られた。これは全反射角以上での透過であるので、一般的な伝搬光の透過とは異なり、結合SPPを介して近接場光が輸送されたRPTであることがわかる。

*N*を増加しても、光は共鳴トンネルしていることが図2から分かる。そして、反射ディップと透過ピークの位置が若干ずれていることが見て取れる。このようなずれは、界面にラフネスを考慮していない計算スペクトルにおいても再現できた。よってこれは界面のラフネス等に起因する外因的損失のみならず、Al膜での誘電率の虚部に起因する内因的損失にも依存すると考えられた。この成果は学会発表および論文発表 [Tomita et al., *Optics Express* 16, 9942 (2008).] を行った。

②上記の結果から、ATR/RPT測定をもちいるとメタマテリアルの内因的損失を見積もることができる可能性が示唆された。これを確認するため、Alよりも内因的損失、すなわち誘電率の虚部が小さなAgを用いて実験し、比較を試みた。

AgとSiO<sub>2</sub>から構成される多層膜メタマテリアルでの光輸送を調べた。試料は全てスパッタリング法で作製した。基板には高屈折ガラスSFL11を用いた。SiO<sub>2</sub>のカップリング層を300nm作製した。そして、AgとSiO<sub>2</sub>の多層膜メタマテリアルを成膜した。AgとSiO<sub>2</sub>の膜厚は、共に40nmとした。最後に、250nmのSiO<sub>2</sub>デカップリング層を成膜した。試料の構造は、SiO<sub>2</sub>/Ag/[SiO<sub>2</sub>/Ag]<sub>*N-1*</sub>/SiO<sub>2</sub>と表される。

光輸送はATR/RPT測定を用いて調べた。定

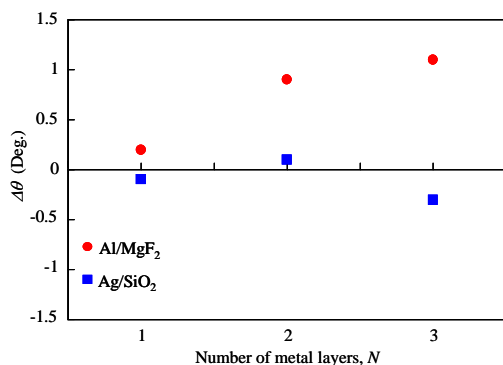


図3 AlとAgでの $\Delta\theta$ の*N*依存性

性的には、Alの場合と似たような結果が得られた。Alの場合とAgの場合でピークシフト量( $\Delta\theta$ )の変化を*N*に対してプロットした結果を図3に示す。

図よりAlに比べて、Agの場合は、 $\Delta\theta$ が

小さいことが見て取れる。よってこの条件においては、 $\Delta\theta$ の大きさが内因的損失の大きさに比例していると言える。しかしこの後、様々な条件で計算した結果、試料構造を変化させた場合は一概にそうは言えないことが明らかになった。以上の結果は、学会発表及び論文発表 [Matsunaga, Tomita et al., *Proc. of SPIE* 7395, 73951J (2009).] を行った。

③これまでのAlやAgの結果からエヴァネッセント光が、実効的な多層膜メタマテリアルを介することで、200nmもの長い距離を輸送されていることが明らかになった。よって次に、どのぐらいの距離までエヴァネッセント光が輸送されるのかを、最も単純な系であるAgとSiO<sub>2</sub>から構成されるMIM構造(すなわち*N*=2)で調べた。絶縁体I層の膜厚を、65、140、420、840nmと変化させて調べた。試料はスパッタリング法を用いて作製した。その光輸送をATR/RPT測定で調べた。結果を図4に示す。65、140nmのI層を持つ試料では、全反射角以上に反射ディップ(透過ピーク)が見えた。電場強度分布計算の結果、これは金属M層と(デ)カップリングSiO<sub>2</sub>層との界面のSPPが、非対称的に結合したASモードを介した光の共鳴トンネルと解釈できた。

ところが420nmの試料では、ディップ(ピーク)が二つ確認できる。全反射角以上のも

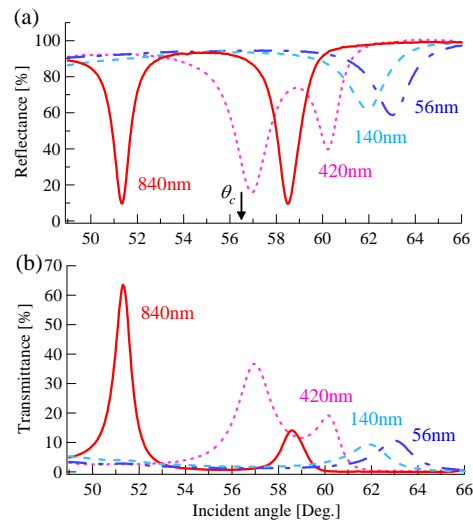


図4 Ag/SiO<sub>2</sub>/AgのATR/RPTスペクトル

のはASモードを介した光の共鳴トンネルによるものである。一方、全反射角付近に見えるディップ(ピーク)は、M層とI層の界面のSPPが対称的に結合した、導波モード(TM<sub>0</sub>モード)を介した光の共鳴輸送によるものであることが、電場強度分布計算から明らかになった。TM<sub>0</sub>モードは、I層の膜厚がさらに増加すると、ASモードに依るトンネルディップ(ピーク)と一体化する。そして、そのトンネル光の強度はTM<sub>0</sub>モードとの一体化の直前

に最大化を迎えることが明らかになった。以上のことから、MIM構造を用いてサブ波長イメージングを行う場合、I層の膜厚が420nm程度のもので、サブ波長情報の強度が最も大きいことが分かった。

更に光の分散関係の計算から、 $TM_0$ モードはI層厚を増加させると、伝搬光領域から全反射領域に連続的に移動することが明らかになった。この $TM_0$ モードを使うと、I層を減少させることで、全反射領域のエヴァネッセント光を伝搬光に変換できる、ハイパーレンズに繋げることができることを示唆している。[Yoshida, Tomita et al., *Physical Review B*, in press.]

「実験・理論両面からの試料構造の最適化」の目的に対しては、金属/誘電体極薄膜多層系メタ物質での光輸送において、どのような結合SPPモードが輸送を担っているのか、その輸送の効率が最も良いのはどのような構造化を明らかにした。外因的損失のみならず内因的損失を考慮した場合、可視光領域ではAlよりもAgの方が、より損失が少ないことが明らかになった。またMIM構造に置いては、導波モードと一体化する直前にトンネル光強度が最大となり、輸送効率が最も良いことが明らかになった。よって当初の目的は100%達成できたと考える。

また当初予想しなかった成果として、MIM構造での特異な導波モードを用いたハイパーレンズの提案ができた。以上を勘案するに、この目的の達成度は120%としたい。

(2) MIM構造の平面内に、ナノ構造を作りこむため、FIB加工装置による加工を行った。直径数百nmの孔のアレイを作製した。今回は残念ながらここで時間切れとなってしまった。今後も継続して、SNOM観察を行っていくことを予定している。

以上より「サブ波長イメージングの原理検証」に関して、当初の目的の達成度は50%とせざるを得ない。

(3) イメージング実証に使用するナノ構造としての生物試料の準備を、今回新たに行った。具体的には、タバコモザイクウイルスの外被タンパク質(TMVCP)を用いることにした。野生型TMVCPの遺伝情報をもつプラスミドDNAを、大腸菌を用いて大量に作製した。また遺伝子組み換え技術を用いて、変異型タンパク質をコードするプラスミドDNAの大量作製にも成功した。現在、これらのプラスミドDNAを用いて大腸菌で野生型及び変異型TMVCPを発現させ、大量作製を行っている。今後は、螺旋状チューブという3次構造を持つTMVCPを足場として、特異な金属ナノ構造を作製し、一括イメージングの実験を予定している。

よって「サブ波長イメージングの実証」に関して、当初の目的の達成度は50%とせざる

を得ない。

## 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 3 件)

① Maiko Yoshida, Satoshi Tomita, Hisao Yanagi, and Shinji Hayashi, "Resonant photon transport through metal-insulator-metal multilayers consisting of Ag and  $SiO_2$ ", **Physical Review B**, in press, 査読有

② Motonobu Matsunaga, Satoshi Tomita, Takashi Yokoyama, and Hisao Yanagi, "Loss monitoring in resonant photon tunneling through metal and dielectric multi-layer metamaterials", **Proceedings of SPIE**, Vol. 7395, 73951J, September 2009, 査読有

③ Satoshi Tomita, Takashi Yokoyama, Hisao Yanagi, Ben Wood, John B. Pendry, Minoru Fujii and Shinji Hayashi, "Resonant photon tunneling via surface plasmon polaritons through one-dimensional metal-dielectric metamaterials", **Optics Express**, Vol. 16, Issue 13, pp. 9942-9950, June 2008, 査読有

[学会発表] (計 9 件)

① 富田知志, 吉田舞衣子, 柳久雄, 林真至, "貴金属を用いたMIM構造でのフォトントランスポート", 日本物理学会 第65回年次大会, 2010年3月22日, 岡山

② 富田知志, 松永元伸, 柳久雄, "Ag/ $SiO_2$ 多層薄膜メタマテリアルでの光の共鳴トンネル", 日本物理学会 2009年秋季大会, 2009年9月27日, 熊本

③ 吉田舞衣子, 富田知志, 松永元伸, 柳久雄, 林真至, "金属薄膜を用いた一次元メタマテリアルでの共鳴フォトントンネリング", 2009年秋季 第70回応用物理学会学術講演会, 2009年9月9日, 富山

④ Satoshi Tomita, Motonobu Matsunaga, Hisao Yanagi, John B. Pendry, and Shinji Hayashi, "Resonant tunneling of light in Ag/ $SiO_2$  multilayer metamaterials", 3rd International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics, 1-4 September 2009, London UK

⑤ Motonobu Matsunaga, Satoshi Tomita, and Hisao Yanagi, "Loss monitoring in resonant photon tunneling through metal/dielectric multi-layer metamaterials", Plasmonics: Nanoimaging, Nanofabrication, and Their Applications V, SPIE Symposium on SPIE NanoScience + Engineering, SPIE Optics + Photonics, 2-6 August 2009, San Diego USA

⑥Satoshi Tomita, Takashi Yokoyama, Hisao Yanagi, Ben Wood, John B. Pendry, Minoru Fujii, and Shinji Hayashi, "Resonant photon tunneling via surface plasmon polaritons through one-dimensional metal-dielectric metamaterials", 2nd International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics (Metamaterials2008), September 21-26, 2008, Pamplona Spain

⑦富田知志, 横山卓司, 柳久雄, Ben Wood, John B. Pendry, 藤井稔, 林真至, "金属/誘電体交互多層薄膜系一次元メタマテリアルでの共鳴フォントンネリング", 第55回応用物理学関係連合講演会, 2008年3月27-30日, 千葉

⑧富田知志, 横山卓司, 柳久雄, 藤井稔, 林真至, "金属/誘電体交互多層薄膜メタマテリアルでの共鳴フォントンネリング実験", 日本物理学会 第63回年次大会, 2008年3月24日, 大阪

⑨横山卓司, 富田知志, 柳久雄, 藤井稔, 林真至, "一次元金属/絶縁体多層薄膜メタマテリアルでの共鳴フォントンネリング", 第18回光物性研究会, 2007年12月14-15日, 大阪

[その他]

ホームページ URL

[http://mswebs.naist.jp/LABs/optics/tomita/jpn/index\\_j.htm](http://mswebs.naist.jp/LABs/optics/tomita/jpn/index_j.htm)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

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