

令和 4 年 6 月 30 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H01902

研究課題名(和文)肉眼で負屈折現象が確認できるバルク光メタマテリアルの開発

研究課題名(英文)Development of bulk optical metamaterial that can observe negative refraction

研究代表者

岡本 敏弘 (OKAMOTO, Toshihiro)

徳島大学・ポストLEDフォトンクス研究所・准教授

研究者番号：60274263

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、光波長域で動作するメタ原子の大量生産と、その立体配置技術確立し、肉眼で負屈折現象が確認できるバルク光メタマテリアルを実現することである。

主な成果は、(1)微小球リソグラフィ法を用いたメタ原子作製と、メタ原子の2次元及び3次元配置技術の構築、(2)メタマテリアル薄膜の実効屈折率テンソル計測手法の構築、(3)任意形状のメタ原子から成るメタマテリアルの実効屈折率を算出するシミュレーション手法の構築、(4)低屈折率包埋材料の利用による動作波長の短波長化実現、等である。

可視光波長帯での負屈折現象が観測可能なバルクメタマテリアルの実現には至っていない。

研究成果の学術的意義や社会的意義

可視光波長動作や目視が可能な負屈折現象の実現はまだ達成できていないが、本研究によって厚みのあるバルクメタマテリアル作製に必要な要素技術が進歩したことにより、自然界には存在しなかった様々な比透電率、比透磁率、屈折率などを持つ新しい光学材料が得られるようになると期待される。これにより、様々な光学機器の性能向上の他、メタマテリアル特有の新たな光学現象を利用した応用が進むなど、これまで作製困難であったため行われていなかったバルク光メタマテリアルに関する研究や応用開発の加速が期待される。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study was to realize mass production of metaatoms and establishment of three-dimensional placement technology with the aim of realizing bulk optical metamaterials in which negative refraction can be observed.

The main results are as follows. (1) Fabrication of meta-atom using nanosphere lithography method and construction of 2D and 3D placement technology of meta-atom. (2) Construction of a method for measuring the effective refractive index tensor of metamaterial thin films. (3) Construction of a simulation method to calculate the effective refractive index of a metamaterial consisting of meta-atoms of arbitrary shape. (4) Realization of shorter operating wavelength by using low refractive index embedded material.

However, a bulk metamaterial in which the negative refraction phenomenon in the visible light wavelength band can be observed has not yet been realized.

研究分野：光工学・光量子科学

キーワード：光メタマテリアル バルク 負屈折現象 スプリットリング共振器

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

電磁波の波長よりも十分小さい微小アンテナを、波長より十分短い間隔で分布させた複合材料は、そのアンテナの設計次第で、自然界の材料にはない特異な電磁応答特性を持つ材料として機能する。このような人工材料をメタマテリアルという。2000年前後のメタマテリアルの理論提唱と実証をきっかけとして、負の屈折率材料を始めとした研究が世界中で盛んに行われるようになった。負の屈折率材料は、物理的な興味だけでなく、その特殊な光屈折現象を利用した超高解像度顕微鏡や、光通信などへの応用への展開も期待されている。しかし光波長域を大将とした多くの研究グループでは、メタサーフェスと呼ばれる2次元メタマテリアルが盛んに研究される一方、厚みのあるバルクのメタマテリアルはほとんど研究されていない。この理由の1つに、マイクロ波～THz波で機能するメタマテリアルに比べ、光波長で共鳴し機能するメタ原子のサイズは100nm程度と小さく、バルクメタマテリアル実現に必要な、ナノ加工技術とメタ原子の量産・3次元配置技術などを両立する技術がまだなかったからである。光メタマテリアルの研究の進歩と応用の発展のためには、バルク光メタマテリアル作製のための新しい技術が望まれていた。

### 2. 研究の目的

本研究の目的を、次のように置いた。

- (1) 光波長域で動作するメタ原子の大量生産技術、及びメタ原子の立体配置技術の確立
- (2) 肉眼で負屈折現象が確認できるサイズのバルク光メタマテリアルの実現

### 3. 研究の方法

(1)バルク光メタマテリアル実現に適した作製手法と作製条件について検討した。光波長域で共鳴する金属スプリットリング共振器 (Split Ring Resonator : SRR) やダイポールアンテナなどの金属メタ原子の作製には、量産性の高い微小球リソグラフィ法を用いた。メタ原子を2次元的に高密度配置させる方法として、静電吸着法を用いた配置技術を利用した。メタ原子を3次元的に配置したバルクメタマテリアルを作製するために、2次元メタマテリアルフィルムを積層する手法と、メタ原子が水中で分散したメタ原子コロイド液を作製する手法について検討した。作製したメタ原子の形状は電子顕微鏡や原子間力顕微鏡にて確認した。メタ原子やメタマテリアル薄膜の光学特性は、紫外可視分光光度計を用いた透過・反射スペクトルの他、構築した実効光学特性評価用干渉計を用いた実効屈折率、顕微分光光学系を用いた単一メタ原子の光散乱スペクトルなどで評価した。

(2)任意形状の金属ナノ構造で生じる光学応答が計算できる有限差分時間領域(FDTD)法と、有効媒質から成る層構造を想定した転送行列計算を組み合わせ、任意形状のメタ原子から成るメタマテリアルの実効屈折率を予測可能な計算手法を構築した。これを用いて、可視波長域で負屈折率を示すバルクメタマテリアルに有効なメタ原子の設計・検討を行った。

### 4. 研究成果

(1)バルク光メタマテリアル実現のための作製手法の構築

光波長域で動作するメタ原子の大量生産と、その立体配置を行うための手法について検討し、明らかになったことを以下に述べる。

微小球リソグラフィ法を用いたメタ原子の作製手法

「基板の前処理」: 洗浄後のガラス基板を、ポリカチオン電解液、ポリアニオン電解液、ポリカチオン電解液の順に浸漬し、基板表面を均一且つ正に帯電させる。なお、各電解液に浸漬する度に超純水にて十分なリンスを行うことが重要である。

「ポリスチレン球状粒子の高密度配置」: 超純水中に分散した粒径100nmのポリスチレンコロイド分散液中に、表面処理後の基板を浸漬させ、負に帯電したポリスチレン球を基板表面に吸着させる。ポリスチレンコロイドの脱イオン処理と、吸着後のリンスが十分に行われていることが重要である。

「金属の斜め蒸着」: 真空熱蒸着装置を用いて、約 20nm 厚さの銀を、基板垂直方向から約 37 度の角度から蒸着し、基板を 90 度面内で回転させた後、再び基板垂直方向から約 37 度の角度から蒸着する。基板の面内回転は、SRR のスリット幅を制御するため行う。本工程に要する時間は、装置の真空引きや大気開放等を含むため長くかかり、量産におけるボトルネックになるが、真空中で基板面内回転できる機構をチャンバ内に設ける(図 1)ことで、真空を破ることなく 8 枚の基板を一度に斜め蒸着することが可能になった。

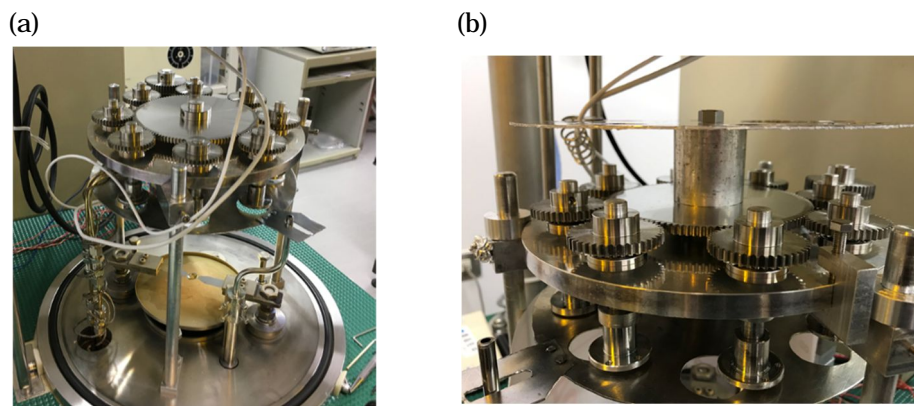


図 1 メタ原子作製用真空蒸着装置 (a) チャンバ内、(b) 基板の面内回転機構

「イオンミリングによるメタ原子構造の形成」: イオンエッチング装置を用いて、基板垂直方向からアルゴンガスを用いたイオンミリングを行う。蒸着膜厚に対するガス流量、放電出力、処理時間など、メタ原子作製に適した条件が存在することが分かった。

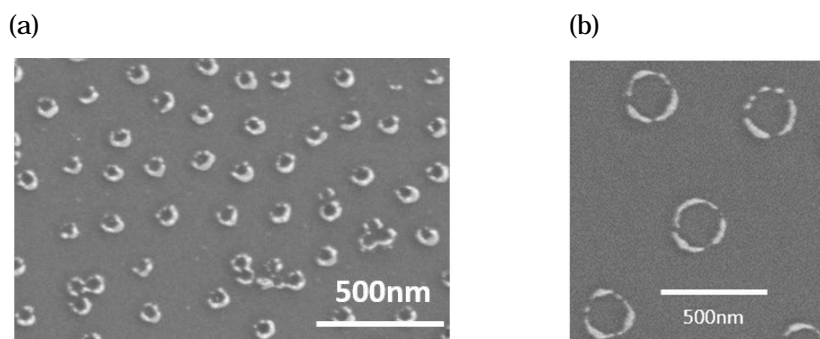


図 2 ガラス基板上に作製した銀 SRR (a) 1 方向からの斜め蒸着で作製した 1 分割 SRR、(b) 3 方向からの斜め蒸着で作製した 3 分割 SRR

以上の一連の工程によって、図 2 のようにガラス基板上に SRR 構造を作製できた。銀の斜め蒸着回数が 1 回で作製した場合はスリットが 1 箇所(図 2(a))、銀の斜め蒸着と 120 度の面内回転を 3 セット行った場合はスリットが 3 箇所有するリング構造(図 2(b))が作製できた。ただし 3 スリットのような多分割 SRR 構造の作製は成功率が低く、同一基板内でも形状のばらつきが大きいため、現時点ではバルクメタマテリアル用の SRR としては採用しなかった。

#### メタマテリアルフィルム作製、及び積層によるバルクメタマテリアル作製

「樹脂包埋」: メタ原子を作製した基板上に包埋材料をスピンコートし、2 次元に分布した多量のメタ原子を包埋したメタマテリアルフィルムを形成する。なお、包埋材料にポリスチレン以外のものを利用する場合には、マスクに用いたポリスチレン球をスコッチテープで除去してから包埋する。

「基板からの剥離」: 基板の前処理の時点で成膜していた犠牲層をアルコールで溶かした後に水に置換することで、表面張力を使って 2 次元メタマテリアルフィルムを基板から剥離可能である。フィルムは疎水性であるため、剥離後のフィルムは水面に浮かぶ

「積層」: 水面に浮かせたメタマテリアルフィルムを別基板ですくい上げる。余分な水分の吸引・乾燥後、約 160 に加熱しフィルムを固定化する。これを繰り返すことで積層する。以上の工程を通して試作した、金 SRR 含有 240 層積層メタマテリアル(ポリスチレン包埋)を図 3 に示す。

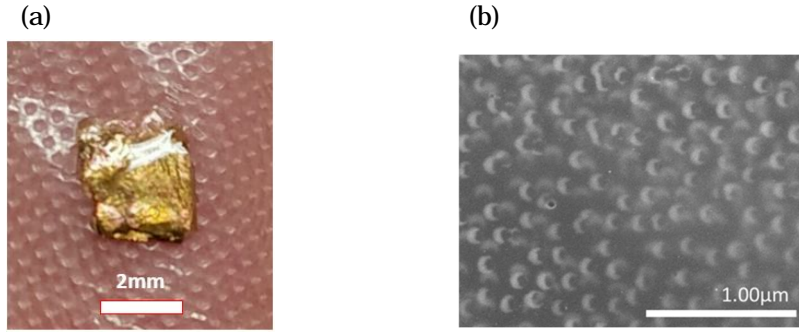


図3 金 SRR 含有積層メタマテリアル (a) 外観, (b) 電子顕微鏡象

メタ原子コロイド液の作製手法

「メタ原子付き微粒子の作製」: ポリスチレン粒子の代わりにシリカ球状粒子を用い、金属の斜め蒸着、及びイオンエッチング処理などの微小球リソグラフィ工程を行うことで、シリカ球表面にリング構造が形成されることがわかった。(図4)

「メタ原子付き微粒子分散液の作製」: メタ原子付き微粒子が付着した基板を超純水中で超音波振動をかけ、基板から剥離することで、メタ原子コロイド液(メタ原子付き微粒子分散液)を作製することに成功した。(図5)

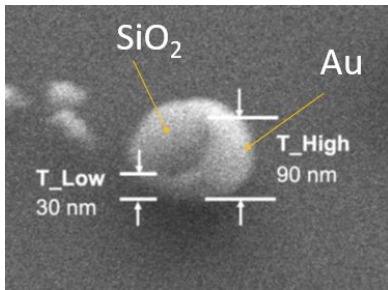


図4 金リング付きシリカ球

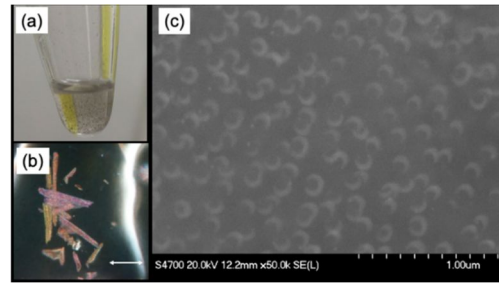


図5 メタ原子コロイド液

(2)メタマテリアル薄膜の実効屈折率テンソル計測手法の構築

光学異方性のあるメタマテリアルを想定した、実効光学定数を表す表式を導出し、入射角  $\theta$  度及び入射角  $0$  度の TE 偏光入射におけるメタマテリアル薄膜の振幅透過係数、振幅反射係数の実験結果から、実効誘電率テンソルや実効透磁率テンソルのいくつかの成分を解析できる手法を構築した。(図6)

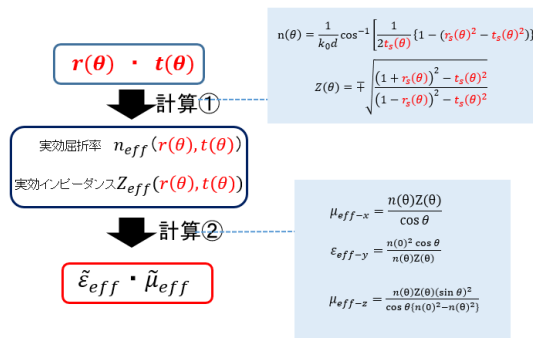


図6 振幅透過・反射係数測定結果から実効光学テンソル成分を求める手法

(3)任意形状のメタ原子から成るメタマテリアルの実効屈折率を算出するシミュレーション手法の構築

任意形状の金属ナノ構造で生じる光学応答が計算できる有限差分時間領域(FDTD)法と、有効媒質から成る層構造を想定した転送行列計算を組み合わせ、任意形状のメタ原子から成るメタマテリアルの実効屈折率等を予測可能なシミュレーション手法を構築した。これを用いて、可視波長域で負屈折率を示すバルクメタマテリアルに有効なメタ原子の設計、特性評価が可能になった。その一例として、NSL 法で作製可能な形状の銀 1 分割 SRR を想定したメタマテリアル薄膜の実効透磁率シミュレーション結果を図7に示す。

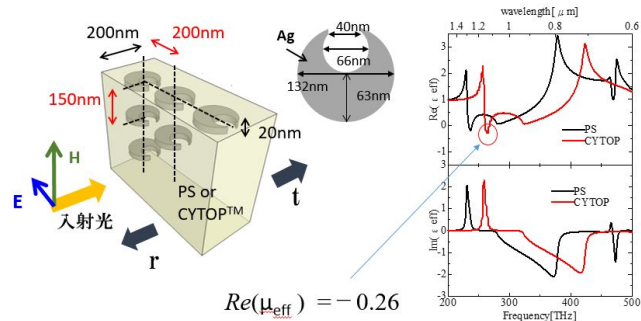


図7 銀 SRR 含有フィルムを想定した実効透磁率シミュレーション結果

(4) 低屈折率包埋材料の利用による動作波長の短波長化実現、  
 ポリスチレンの他、スピノンガラスや CYTOP™ を包埋材料の候補とし、実際に SRR 包埋膜を作製した。このうち、屈折率が最も小さい CYTOP™ でメタマテリアルフィルムが作製可能であることを確かめ、SRR 含有メタマテリアルフィルムの磁気共鳴波長も短くできることを明らかにした。(図8) 利用できる包埋材料のうち最も屈折率の小さい CYTOP™ ( $n=1.34$ ) を用いても、磁気共鳴波長は近赤外波長域となり、1 分割 SRR メタマテリアルでは可視波長域での動作は難しいことが明らかになった。

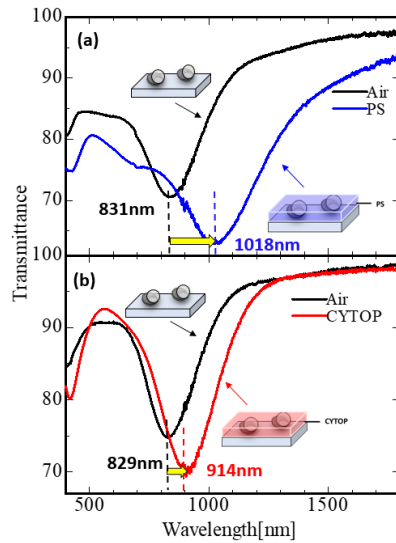


図8 包埋に伴う磁気共鳴波長シフトの材料による違い 上段：ポリスチレンで包埋した場合、下段：CYTOP™ で包埋した場合

本研究の最終目標である、可視光波長帯での負屈折現象が観測可能なバルクメタマテリアルの実現には至らなかったが、バルクメタマテリアル実現のための要素技術構築は達成できた。今後近赤外波長域をターゲットとしたバルクメタマテリアル研究を進める。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 岡本 敏弘, 原口 雅宣	4. 巻 69
2. 論文標題 NSL法を用いたメタマテリアルの作製	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 化学工業	6. 最初と最後の頁 884- 889
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 富田 亮, 岡本 敏弘, 山口 堅三, 桑原 稔, 原口 雅宣
2. 発表標題 微小球リソグラフィ法を用いた多分割リング共振器の作製
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡辺 智貴, 岡本 敏弘, 山口 堅三, 原口 雅宣
2. 発表標題 磁気応答を示す金属メタ原子分散液の作製
3. 学会等名 第17回プラズモニクスシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 福田知洋, 岡本敏弘, 岩本知佳, 原口雅宣
2. 発表標題 三日月型スプリットリング共振器で構成された光メタ表面における実効透磁率の数値シミュレーション
3. 学会等名 日本光学会年次学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡本 敏弘
2. 発表標題 金属スプリットリング共振器と光メタマテリアル
3. 学会等名 日本光学会ナノオプティクス研究グループ 第25回研究討論会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 富田 亮, 岡本 敏弘, 谷川 紘太, 鎌田 隼, 岩本 知佳, 福田 知洋, 栗田 真, 北岡 昌真, 原口 雅宣
2. 発表標題 バルク光メタマテリアル実現に向けた取り組み
3. 学会等名 LED総合フォーラム2019in徳島
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 渡辺智貴、岡本敏弘、山口堅三、原口雅宣
2. 発表標題 表面修飾技術を用いた金リング構造の垂直配置手法の検討
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋期学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡部健太、岡本敏弘、小野功馬、山口堅三、原口雅宣
2. 発表標題 分割リング共振器含有フィルムにおける磁気共鳴短波長化のための包埋材料の検討
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第42回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岡本敏弘
2. 発表標題 光磁界と相互作用する金属スプリットリング共振器で構成された光メタマテリアルの開発
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第42回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計3件

1. 著者名 中川勝, 岡本敏弘, 藤井雅留太, 平沢一真, 長尾忠昭, 花村克悟, 松井裕章, 宮崎康次, 岩見健太郎, 玉山泰宏, 山本洋平, 山岸洋, 内野俊, 雨宮智宏, 高原淳一, 森竹勇斗, 向井剛輝, 岩長祐伸, 藪浩, 島田敏宏, 他33名	4. 発行年 2022年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 508
3. 書名 メタマテリアルの設計、作製と新材料、デバイス開発への応用	

1. 著者名 高原 淳一, 岩長 祐伸, 長崎 裕介, 田中 拓男, 佐野 栄一, 松井 龍之介, 岡本 敏弘, 納谷 昌之, 金森 義明, 岩見 健太郎, 玉山 泰宏, 堀 俊和, 宮崎 英樹, 久保 若奈	4. 発行年 2020年
2. 出版社 R&D支援センター	5. 総ページ数 202
3. 書名 メタマテリアル, メタサーフェスの設計・作製と応用技術	

1. 著者名 杉山 茂, 森賀 俊広, 加藤 雅裕, 村井 啓一郎, 堀河 俊英, 霜田 直宏, 古部 昭広, 柳谷 伸一郎, 小笠原 正道, 山本 孝, 中村 嘉利, 浅田 元子, 佐々木 千鶴, 田中 秀治, 竹内 政樹, 竹谷 豊, 奥村 仙示, 増田 真志, 岡本 敏弘	4. 発行年 2020年
2. 出版社 徳島大学産業院出版部	5. 総ページ数 88
3. 書名 枯渇資源と技術開発	

〔産業財産権〕



〔その他〕

徳島大学ポストLEDフォトンクス研究所  
https://www.pled.tokushima-u.ac.jp/  
徳島大学理工学部理工学科情報光システムコース光系  
https://www.opt.tokushima-u.ac.jp/

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	原口 雅宣  (HARAGUCHI Masanobu)  (20198906)	徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・教授    (16101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------