

令和 6 年 9 月 11 日現在

機関番号：82108

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2020～2023

課題番号：20K21134

研究課題名(和文)100 GHz 超動作のコヒーレント光メタデバイスの研究

研究課題名(英文)Studies on coherent optical metadevices working at more than 100 GHz

研究代表者

岩長 祐伸 (IWANAGA, Masanobu)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・電子・光機能材料研究センター・主席研究員

研究者番号：20361066

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：超高繰り返し動作(100 GHz 超)を最終目標として、純光学的な動作を原理とするメタデバイス構造の検討を行った。メタデバイスの形態として1つは面内の光導波を基軸とするデバイス、もう1つは面から垂直方向に光放射するデバイスがある。実験研究として、面放射型の高輝度光メタデバイスの創出に向けた基礎研究を行った。2次元原子層発光材料を光メタ表面に転写実装することにより、面放射型の光メタデバイスを作製し、その発光特性を実験的に研究した。その結果、顕著な発光増強効果を見出した。発光には1ピコ秒オーダーの超高速成分があり、100 GHz動作も原理的に可能であることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在のCPU、約3 GHz動作、を超える非常に大きな繰り返し動作、最終目標100 GHz 超え、を可能にする新デバイス(メタデバイスと呼ぶ)を創出するための基礎研究を行った。実用化されていない新構造、すなわち、原子層膜材料と光機能性ナノ構造表面(メタ表面)の接合系、を実験的に研究することで原理的に100 GHz動作可能な応答を観測した。

研究成果の概要(英文)：Aiming finally at ultrahigh repetition more than 100 GHz, we considered metadevices that work in purely optical manners. One of the metadevices has in-plane light-guide structures and the other has surface-emitting structures. As experimental studies, we conducted fundamental research on surface-emitting highly bright optical metadevices. Transferring two-dimensional atomic-layer luminescent materials onto optical metasurfaces, we prepared surface-emitting optical metadevices and examined the photoluminescent (PL) properties in the experiment. Consequently, we found prominent enhancing effects for the PL. The PL has an ultrafast component in the order of 1 picosecond, showing that 100 GHz operation is in principle possible.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：メタ表面 ナノ・マイクロフォトニック構造 原子層材料 発光増強 ラマン散乱増強

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

電子デバイスによる情報処理がコンピュータの発明以降、常に主流であり続けており、研究開始当初のみならず現在においてもそれは変わっていない。コンピュータの CPU (中央処理ユニット) のクロック周波数は 3 GHz 程度で頭打ちとなっており、ほぼ上限に達したと考えられている。したがって、これより大幅な高速化 (つまり、高い繰り返し動作) を実現するためには、アイデアの大きな変革が必要である。純光デバイスにおいては 100 GHz 動作であっても原理的な制約はなく、飛躍的な高速化が可能であると考えられる。このように、研究当初では光デバイスに着目して、超高速動作が可能なる光「超」デバイス (光メタデバイス) の研究に着手した。

2. 研究の目的

上述の背景を受けて、超高速動作に着目して具体的な研究対象を選定し、実験的研究を中心に行った。次節以降ではこの結果を中心に述べる。また、スーパーコンピュータ上での数値計算による光メタデバイスの設計と特性解明に関する研究も行った。

3. 研究の方法

実験研究として、面放射型の高輝度光メタデバイスの創出に向けた基礎研究を行った。2次元単原子層発光材料を光メタ表面に転写実装することにより、面放射型の光メタデバイスを作製し、その発光特性を実験的に研究した。単原子層材料として硫化タングステン (WS_2) のセンチメートル平方サイズの連続膜を佐久間芳樹 NIMS 特別研究員に提供を受け、楊旭 NIMS ポスドク研究員 (当時) に光メタ表面上に転写工程を実施してもらうことで試料を用意した。光メタ表面には 2 種類あり、1 つは全誘電体型メタ表面 [1]、もう 1 つはプラズモン・光導波路モードハイブリッドメタ表面 [2-4] であった。いずれも平坦シリコン基板と比べて蛍光分子の発光強度を 1000 倍以上増強するという顕著な特性をもつ。

4. 研究成果

図 1 に全誘電体メタ表面と単原子層材料の接合系における結果の概要をまとめている。図 1(A) は接合系の概念図であり、シリコンナノ円柱の周期列 (周期長 400 nm、円柱直径 228 nm、高さ 200 nm) からなるメタ表面の上に単原子層膜が転写された様子を図示している。実際の試料写真を図 1(B) に示す 2 cm 角の SOI (Silicon-On-Insulator) 基板にトップダウン型の微細加工を実施してメタ表面を作製した。中央付近に建て並びの 3 つの長方形エリアがメタ表面である。転写した約 1 cm^2 の単原子層連続膜の四隅を白矢印で示している。試料の走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を図 1(C) に示している (スケールバー 500 nm)。シリコンナノ円柱の上に薄膜が乗っている状態を確認できる。図中の 印は単原子膜に生じた穴を指しており、単原子層連続膜とのコントラストを確認できる。

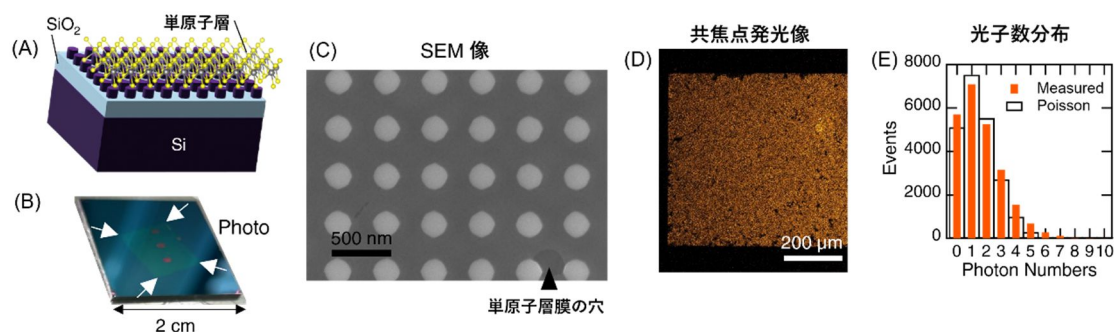


図 1. (A) 単原子層を全誘電体メタ表面上に転写した模式図 . (B) 試料写真 . 1 辺が 2 cm の基板中央付近に 3 箇所メタ表面 (縦並び) を作製し、その上に約 1 cm^2 の単原子層連続膜を転写した . 白矢印は連続膜の四隅を示している . (C) SEM 像 . (D) 共焦点発光像 . (E) 光子数分布 . オレンジ棒グラフは共焦点発光像から光子数計数した結果 . 白抜き棒グラフはポアソン分布を示す . 文献 [5] から引用

メタ表面上における発光測定を行い、図 1(D) には正立型共焦点蛍光顕微鏡による発光像を示している。励起波長は 514 nm とした。スケールバーは 200 μm を表す。発光信号は光子数を計数して記録した。これにより像の各ピクセルは発光光子数を表す。擬似カラーを用いてオレンジ色で表示している (光子数 0 個は黒に対応)。画像の発光エリアはメタ表面エリアと一致しており、周辺の黒い部分はメタ表面外である。すなわち、メタ表面上とそれ以外において発光強度に明確なコントラストがあることが分かる。このように顕著な発光増強効果を見出した。発光スペ

クトル測定も行い、発光強度の増強度(メタ表面上と外の発光強度比)を求めたところ、波長 615 nm において最大 300 倍であった。これまでに多数の報告例が全誘電体メタ表面と原子層材料の接合系における発光増強効果を報告してきたが、それらのなかで最大の発光増強効果を今回得ることができた[5]。

共焦点発光像のなかでメタ表面上に解析エリアを設定して、図 1(E) に示す光子数分布を得た(オレンジ色棒グラフ)。光子数分布は 0 個から 7 個までの範囲に分布が集中しており、0 個が全体の 14.4% を占める。弱励起下における測定であることが分かる。この分布はポアソン分布によって、その特徴を再現できる(白抜き黒線棒グラフ)。このことは観測した発光が単一モードのコヒーレント状態[6]から発したことを強く示唆している。この場合の単一モードとは単原子層材料の A 励起子状態である。報告者が知る限り、非線形性応答を含まない弱励起(線形応答)の条件下で励起子状態のコヒーレント状態を観測した結果は今回が初めてである。

単原子層発光の時間領域での応答も測定した。図 2(A) にメタ表面上に転写された単原子層材料の発光応答をサブピコ秒の時間域で示している(測定データ: オレンジ色の点)。励起光として波長 540 nm、パルス幅 2 ps のレーザー光を用いた。測定装置応答関数 (IRF) を緑色線で示しており、半値幅 10 ps であった。IRF 応答時間外の発光データを指数関数でフィッティングした結果を黒線で示しており、発光寿命は 22 ps であった。この成分は A 励起子の直接遷移による成分と理解できる。励起子バンド計算から A 励起子にはバレー間の K- Γ 間接遷移が示唆されていたが、ナノ秒域での測定により 10 ns より長い発光成分の存在も明らかにした[5]。ここでは、長寿命成分があるという結果を述べるにとどめる。

発光の時間応答に関して特徴的なこととして、図 2 から見て取れるように IRF よりも応答が早い 1 ピコ秒オーダー以下の超高速成分がある。ピコ秒のパルスレーザー光に同期する発光応答であり、100 GHz を超える動作も可能な光応答である。メタ表面上で強度が増強され、顕在化している。この発光の起源は単原子層材料からの励起状態トランスファーによる無輻射遷移への励起移動であると考えられる[5]が、メタ表面上では輻射遷移が有効化できることにより単なる励起子の失活となる無輻射遷移が抑制される効果により、発光として検出可能な成分が顕在化すると考えられる。

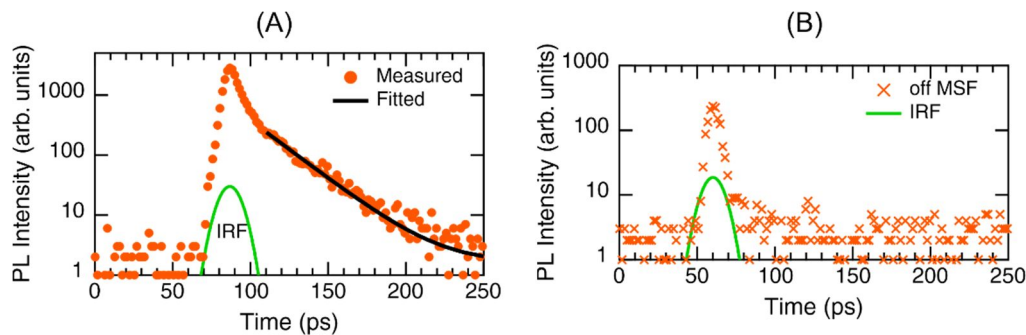


図 2. (A) メタ表面上の単原子層材料のサブナノ秒域における発光減衰応答。オレンジ色点は測定データを表し、黒線は指数関数によるフィッティング曲線、緑色線は装置応答関数 (IRF) を表す。(B) メタ表面外に転写された単原子層材料の発光応答。オレンジ色 × 印は測定データを表す。文献[5]から引用

プラズモン・光導波路モードハイブリッドメタ表面においても単原子層材料との接合系を作製し、顕著な発光増強効果を明らかにした。この系においてはメタ表面上と外の発光強度比(像強度)は最大 1030 倍に達した[7]。プラズモン共鳴を特徴とするメタ表面やナノ構造と原子層材料の接合系としては過去の報告例と比較して、最大級の増強効果であった。詳細は参考文献[7]に譲るが、全誘電体メタ表面と類似性のある結果であり、顕著な発光増強と発光特性を明らかにした。この接合系の概念図を図 3 に示す。メタ表面上での発光として放射される光子を赤点で示している。緑色は励起レーザー光を模している。このプラズモン系メタ表面上では、発光増強のみならず、大きなラマン散乱増強効果も観測された。

上述の原子層材料とメタ表面を用いた研究のほかにも、ナノフォトニック構造による屈折率の光センサに関する研究を行い、論文として公刊した[8-10]。明快な結果の一つとして、屈折率セン

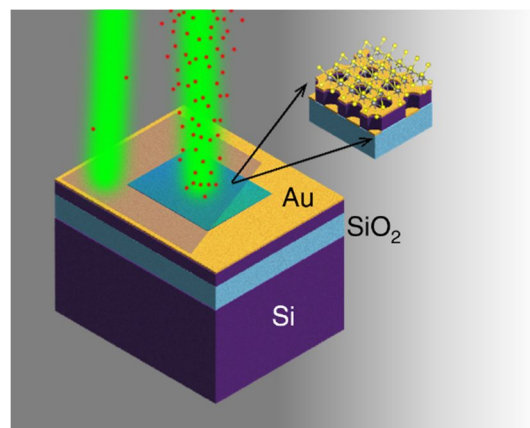


図 3. プラズモン・光導波路モードハイブリッドメタ表面と単原子層材料の接合系の概念図。緑色のビームは励起光、赤点は発光を模式的に表す。文献[7]から引用

サの物理限界を明らかにして、それにほぼ一致する光メタ表面構造を明示することができた[9]。

5. まとめ

超高速動作可能な光メタデバイスに注目して、本基礎研究を実施してきた。単原子層材料とメタ表面の接合系（もしくは融合系）において発光ダイナミクス of 顕著な活性化、発光増強を見出すことができた。発光の時間応答としてピコ秒オーダー以下の超高速応答があることも観測した。この成分に関しては 100 GHz 超動作が可能である。今後、光メタデバイスの応用としての側面を考える際には、光信号としての生成・検知の効率などを含めて、総合的に検討することが必要である点は他の光デバイスと共通である。

謝辞

メタ表面の高精度な数値計算は東北大学サイバーサイエンスセンターのスーパーコンピュータ SX-AOBA を使って実行した。また、メタ表面の極微細加工は所属機関 NIMS の共用設備を利用して行い、文部科学省 ARIM 事業の支援を受けた（JPMXP1223NM5163）。

参考文献

- [1] M. Iwanaga, “All-Dielectric Metasurfaces with High-Fluorescence-Enhancing Capability,” *Applied Sciences* **8**, 1328 (2018).
- [2] M. Iwanaga and B. Choi, “Heteroplasmon Hybridization in Stacked Complementary Plasmo-Photonic Crystals,” *Nano Letters* **15**, 1904–1910 (2015).
- [3] B. Choi, M. Iwanaga, H. T. Miyazaki, Y. Sugimoto, A. Ohtake, and K. Sakoda, “Overcoming metal-induced fluorescence quenching on plasmo-photonic metasurfaces coated by a self-assembled monolayer,” *Chemical Communications* **51**, 11470–11473 (2015).
- [4] M. Iwanaga, B. Choi, H. T. Miyazaki, and Y. Sugimoto, “The artificial control of enhanced optical processes in fluorescent molecules on high-emittance metasurfaces,” *Nanoscale* **8**, 11099–11107 (2016).
- [5] M. Iwanaga, X. Yang, V. Karanikolas, T. Kuroda, and Y. Sakuma, “Prominently enhanced luminescence from a continuous monolayer of transition metal dichalcogenide on all-dielectric metasurfaces,” *Nanophotonics* **13**, 95–105 (2024).
- [6] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, 3rd ed. (Oxford University Press, UK, 2000). Chapter 5
- [7] M. Iwanaga, X. Yang, V. Karanikolas, T. Kuroda, and Y. Sakuma, “2D-Material-Fused High-Emittance Plasmo-Photonic Metasurfaces,” *Advanced Optical Materials* (2024), doi:10.1002/adom.202303309.
- [8] K. Watanabe and M. Iwanaga, “Nanogap enhancement of the refractometric sensitivity at quasi-bound states in the continuum in all-dielectric metasurfaces,” *Nanophotonics* **12**, 99–109 (2023).
- [9] M. Iwanaga, “A Design Strategy for Surface Nanostructures to Realize Sensitive Refractive-Index Optical Sensors,” *Nanomaterials* **13**, 3081 (2023).
- [10] K. Watanabe and M. Iwanaga, “Optimum asymmetry for nanofabricated refractometric sensors at quasi-bound states in the continuum,” *Applied Physics Letters* **124**, 111705 (2024).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Watanabe Keisuke, Iwanaga Masanobu	4. 巻 12
2. 論文標題 Nanogap enhancement of the refractometric sensitivity at quasi-bound states in the continuum in all-dielectric metasurfaces	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nanophotonics	6. 最初と最後の頁 99 ~ 109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1515/nanoph-2022-0565	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Iwanaga Masanobu	4. 巻 13
2. 論文標題 A Design Strategy for Surface Nanostructures to Realize Sensitive Refractive-Index Optical Sensors	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nanomaterials	6. 最初と最後の頁 3081 ~ 3081
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/nano13243081	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Iwanaga Masanobu, Yang Xu, Karanikolas Vasilios, Kuroda Takashi, Sakuma Yoshiki	4. 巻 13
2. 論文標題 Prominently enhanced luminescence from a continuous monolayer of transition metal dichalcogenide on all-dielectric metasurfaces	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nanophotonics	6. 最初と最後の頁 95 ~ 105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1515/nanoph-2023-0672	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Watanabe Keisuke, Devi Hemam Rachna, Iwanaga Masanobu, Nagao Tadaaki	4. 巻 12
2. 論文標題 Vibrational Coupling to Quasi Bound States in the Continuum under Tailored Coupling Conditions	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 2301912
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adom.202301912	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Watanabe Keisuke, Iwanaga Masanobu	4. 巻 124
2. 論文標題 Optimum asymmetry for nanofabricated refractometric sensors at quasi-bound states in the continuum	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 111705
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0158793	査読の有無 有
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 -

1. 著者名 Iwanaga Masanobu, Hironaka Takashi, Ikeda Naoki, Sugasawa Takehito, Takekoshi Kazuhiro	4. 巻 23
2. 論文標題 Metasurface Biosensors Enabling Single-Molecule Sensing of Cell-Free DNA	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 5755 ~ 5761
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.3c01527	査読の有無 有
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 -

1. 著者名 Iwanaga Masanobu, Yang Xu, Karanikolas Vasilios, Kuroda Takashi, Sakuma Yoshiki	4. 巻 -
2. 論文標題 2D Material Fused High Emission Plasmo-Photonic Metasurfaces	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adom.202303309	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 渡邊敬介、岩長祐伸
2. 発表標題 ナノギャップを有するメタサーフェスの準BIC磁気双極子モード観測
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩長祐伸
2. 発表標題 メタサーフェスの光センサーへの展開
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渡邊敬介、岩長祐伸
2. 発表標題 BIC に基づく誘電体メタサーフェスにおける屈折率感度増大
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩長祐伸
2. 発表標題 ナノ共振器アレイからなる全誘電体メタ表面の連続状態における光束縛状態活性
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩長祐伸、楊旭、カラニコラスバシリオス、黒田隆、佐久間芳樹
2. 発表標題 プラズモン・フォトンハイブリッドメタ表面による原子層発光増強
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 岩長祐伸、楊旭、カラニコラスバシリオス、黒田隆、佐久間芳樹
2. 発表標題 全誘電体メタ表面上の遷移金属ダイカルコゲナイト単原子層における量子コヒーレント状態の可視化
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 岩長祐伸他（執筆者総数：54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	

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 生体分子自動検出装置	発明者 岩長祐伸	権利者 国立研究開発法人 物質・材料研究機構
産業財産権の種類、番号 特許、特願2022-175611	出願年 2022年	国内・外国の別 国内
産業財産権の名称 検査用データ運用システム、並びに、データ整形、保存および解析の方法	発明者 岩長祐伸、黒澤毅司	権利者 国立研究開発法人 物質・材料研究機構
産業財産権の種類、番号 特許、特願2023-088702	出願年 2023年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

https://samurai.nims.go.jp/profiles/IWANAGA_Masanobu NIMS 研究者紹介サイト (SAMURAI)
https://www.nims.go.jp/nanophoto/iwanaga/ 研究成果紹介サイト

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
研究協力者	楊 旭 (Yang Xu)	国立研究開発法人物質・材料研究機構 (82108)	
研究協力者	カラニコラス バシリウス (Karanikolas Vasilios)	国立研究開発法人物質・材料研究機構 (82108)	
研究協力者	佐久間 芳樹 (Sakuma Yoshiki)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・電子・光機能材料研究センター (82108)	
研究協力者	黒田 隆 (Kuroda Takashi)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・電子・光機能材料研究センター (82108)	

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