

研 究 報 告 書

「フラクタル構造における光制御可能性の探索と光機能素子の創製」

研究期間：平成 19 年 10 月～平成 23 年 3 月

研究者：宮丸 文章

1. 研究のねらい

人工的に作製した金属微細構造によって、これまでにない新たな光学特性をもつ物質を創製することが本研究の目的である。また新たな特性を用いた光機能素子への応用を目指す。具体的には、金属の微細構造として大きく分けて次の 3 つの構造を用いる。

(1) プラズモニック結晶

プラズモニック結晶は、波長と同程度の間隔の周期構造を持った物質である。金属薄膜に周期的に開口を空けた構造において、ある周波数に特異的な透過ピークが現れる、“異常透過現象”が観測される。1998 年に Ebbesen らによって発表されたこの現象は、10 年以上経った後でも、そのメカニズムが明確に解明されていなかった。本研究では、この異常透過現象のメカニズムを解明し、さらにその特性を応用展開することが目的である。特に異常透過のメカニズム解明に関しては、長い間世界中で論戦が繰り広げられてきた、異常透過の担い手としての表面波の特性とその生成過程に関する知見を得ることが最大の目的である。

(2) メタマテリアル（微細構造のサイズがサブ波長サイズ）

メタマテリアルは、波長よりも十分に小さなサブ波長構造によって、有効誘電率と有効透磁率を自在に制御し、自然界には存在しない光学特性をもつ物質を実現しようとするのが目的である。現在のメタマテリアル研究において、最大の問題は 3 次元の試料を作製することが困難なことである。メタマテリアル研究でよく使用される構造として、金属円環の一部にギャップが存在する形状の分割リング共振器(SRR)がある。磁場ベクトルを、円環面を貫く方向に向けた電磁波を入射すると、分割リング共振器が高周波の LC 回路として働き、ある周波数で磁気共鳴が起きる。その磁気共鳴によって有効透磁率を変調させる。テラヘルツ波領域では、これまでフォトリソグラフィ技術によって 2 次元面上の SRR が作製されていた。しかし 2 次元の SRR では、磁場ベクトルを円環面に垂直に向ける実験が非常に困難であり、電場による磁気共鳴のような間接的な方法で、SRR の磁気共鳴の存在が確認されていた。そこで本研究では、3 次元の SRR メタマテリアルを作製することにより、テラヘルツ領域において、純粋な磁気共鳴を観測することを目指す。さらに、その作製技術を用いて、テラヘルツ領域の 3 次元負屈折率物質を作製することを目指す。

(3) フラクタルメタマテリアル

フラクタルは、自己相似形の微細構造であり、目的とする波長よりも小さなサイズから、波長よりも大きなサイズまでをすべて含んだ構造である。本研究では、フラクタルをメタマテリアルのユニットセルのデザインとして使用した際の、フラクタル特有の光学特性を発見することを目的とする。またその光学特性を、テラヘルツ波放射用の光伝導アンテナに適用することによって、新規の有用なテラヘルツ波放射素子の開発を目指す。

2. 研究成果

(1) プラズモニック結晶

本研究では、金属開口アレイにおいて観測される異常透過現象のメカニズムを解明し、最後まで残されていた問題に対する解答を見いだした。さきがけ研究における、重要な成果は次の2点である。

1 つめは、開口サイズによって表面波励起メカニズムから局所共鳴メカニズムへ移り変わることを実験により見いだした。図 1(a)の挿入図に本実験で使用した、正方開口アレイの模式図を示す。正方開口の間隔は 500 ミクロンで固定し、入射電磁波の電場成分に垂直な方向の開口サイズを 190 ミクロンから 450 ミクロンまで段階的に変化させた。そのときの透過スペクトルを図 1(a)に示す。開口サイズが大きくなるに従って、透過ピークが低周波数シフトしているのがわかる。このような開口サイズによる透過スペクトルの影響は、それまえ主なメカニズムと考えられてきた表面波励起メカニズムでは説明できないものであった。しかし、ピーク周波数を、開口サイズの関数としてプロットすると、この特性の原因が明らかになる(図 1(c))。図 1(c)の○が実験で得られた透過ピーク周波数をプロットしたものである。赤い実線が、正方開口のサイズから計算される、局所共鳴(金属スロットの半波長共鳴)の共鳴周波数である。また黒の点線が、表面波の励起周波数である。今、開口の間隔は固定しているため、表面波の励起周波数は開口のサイズによらず一定である。もし透過ピークの原因が、表面波励起によるもののみであれば、透過ピークの周波数は変化しない。しかし実際には、開口サイズが小さいときは表面波の励起周波数付近にあったピーク周波数が、開口サイズが大きくなるに従って、ピーク周波数は低周波数側にシフトし、赤の実線に一致するようになる。この結果は、これまで1つのメカニズムで考えられてきた透過ピークの原因が、実は2つのメカニズムによるものであることを意味している。どちらのメカニズムがより支配的になるかは、開口のサイズによって決定され、中間のサイズでは、2つのメカニズムが競合し混じり合った状態になる。局所共鳴は、最近研究が盛んに行われているメタマテリアルの分野で頻繁に使用される基本原理であるので、本結果は、物質の特性がプラズモニック結晶からメタマテリアルへ移り変わる状態を観測したとともらえることができる。

2 つめの成果として、完全導体の開口アレイにおける表面波励起メカニズムの解明を行った。表面プラズモン励起によって金属表面に電磁波が局在することが、異常透過のメカニズムとして重要であることがわかっていたが、平坦な完全導体上では、理論上表面プラズモンが励起されない。テラヘルツ波やミリ波では、金属はほとんど完全導体と考えられるため、その領域で観測される異常透過には、表面波が本当に励起されているかどうか不明であった。また従来の周期的な開口アレイでは、波長と同じ周期で開口が存在するため、それまでシミュレーションなどで観測されていた金属表面での局在電磁波が、本当に表面波かどうか判断できなかった。その問題を解決するため、図 2(a)に示すようなカゴメ格子の金属開口構

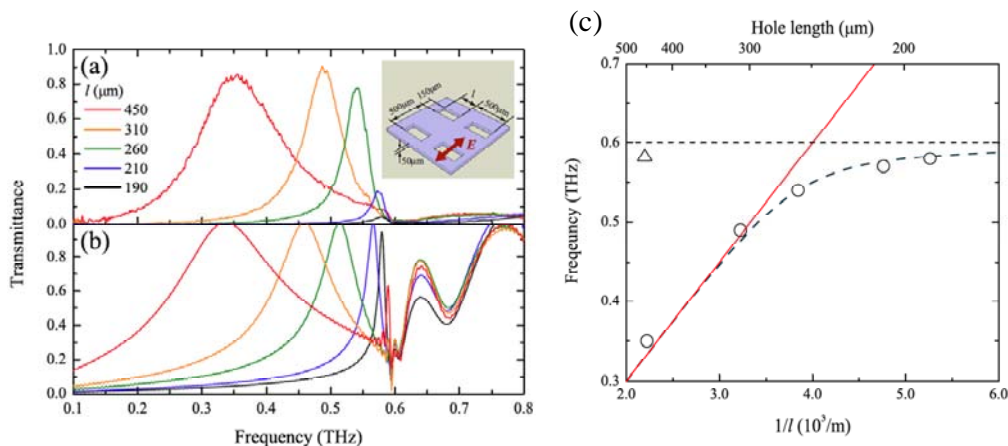


図1 (a) 方形開口アレイの透過スペクトル(実験), (b) 同透過スペクトル(シミュレーション), (c) 開口サイズに対する透過ピーク周波数

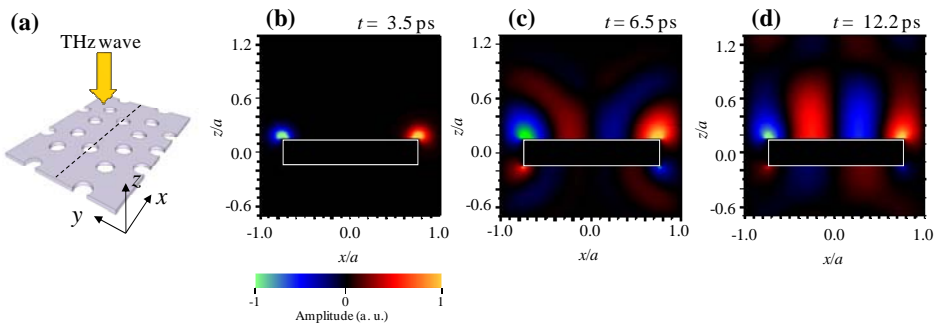


図2 (a) カゴメ格子開口構造, (b)–(d) 時刻3.5, 6.5, 12.2ps後の電場振幅分布

造を作製し、異常透過ピークを観測すると同時に、表面波の状態をシミュレーションにより解析した。その結果、平坦な完全導体表面にも電磁波が局在することを見いだした。さらに、その表面波の励起メカニズムも明らかにした。図 2(b)–(d)はカゴメ格子のユニットセルを断面から見た電場分布を示している。電磁波が入射した初期の時刻では(図 2(b))開口の外周エッジに、エッジモードと呼ばれる電磁波の局在が観測される。そのエッジモードが散乱され、導体表面に伝搬していき(図 2(c))、最終的に平坦な導体表面に表面波が励起される(図 2(c))。このような励起過程は、従来の周期開口アレイにも適用されるべきものであり、ミリ波から可視光領域までの非常に幅広い周波数領域で観測される異常透過現象に共通するメカニズムを提供するものであると考えている。

プラズモニック結晶における異常透過現象のメカニズム解明に加え、異常透過現象を利用した高感度センサへの応用展開も行った。表面波は、金属表面の状態に敏感に反応する。そのため、金属表面に付着させた微量な試料の状態変化や、付着量の変化を高感度でセンシングすることができる。このような方法は、可視光領域で表面プラズモンセンサとして利用されているが、共鳴周波数を任意に制御することは難しく、テラヘルツ波のような長波長領域での適用は困難であった。金属開口アレイでは、開口間隔によって共鳴周波数を任意に制御することができるので、センシング対象に適した周波数を選択することができ、そのため共鳴吸収のある試料などでは、非常に高感度なセンシングが可能となるメリットがある。この金属開口アレイを用いたセンシングに関する成果は、コニカミノルタ画像科学奨励賞とThe 2nd THz Awardを受賞している。

(2) メタマテリアル

現在のメタマテリアル研究において、最大の問題は 3 次元の試料を作製することが困難なことである。本研究では、3 次元の SRR メタマテリアルを作製することにより、入射磁場による純粋な磁気共鳴の観測に成功した。図 3(a)に、ユニットセルとして用いた分割リング共振器 (SRR) の模式図を示す。磁場ベクトルを、円環面を貫く方向に向けた電磁波を入射すると、分割リング共振器が高周波の LC 回路として働き、ある周波数で磁気共鳴が起きる。その磁気共鳴によって有効透磁率を変調させる。この SRR を 2 次元基板上に作製し、2 次元のメタマテリアルシートを積層させることによって 3 次元のメタマテリアルの作製を行った。その際、積層間隔は波長よりも短くする必要がある。そこで、本研究では図 3(b)に示すような、厚さ 100 ミクロンの PET フィルム基板を用いた。図 3(c)に、作製した 3 次元メタマテリアルの写真を示す。赤色の矢印の方向に、2 次元メタマテリアルシートを約 100 枚程度積層している。この試料において、約 18 万個ほどの SRR のユニットセルが使用されている。この試料の透過スペクトルを図 3(d)に示す。磁場ベクトルを SRR 面に垂直に向けた配置の場合(実線)、0.35THz 付近に共鳴ディップが観測されているのがわかる。この共鳴ディップが、SRR に対する純粋な磁気共鳴である。一方、磁場ベクトルを SRR 面に水平に向けた配置の場合(破線)、共鳴ディップが観測されていないことも、裏付けとなっている。またこの実験結果は、理論シミュレーション(図 3(e))ともよく一致している。

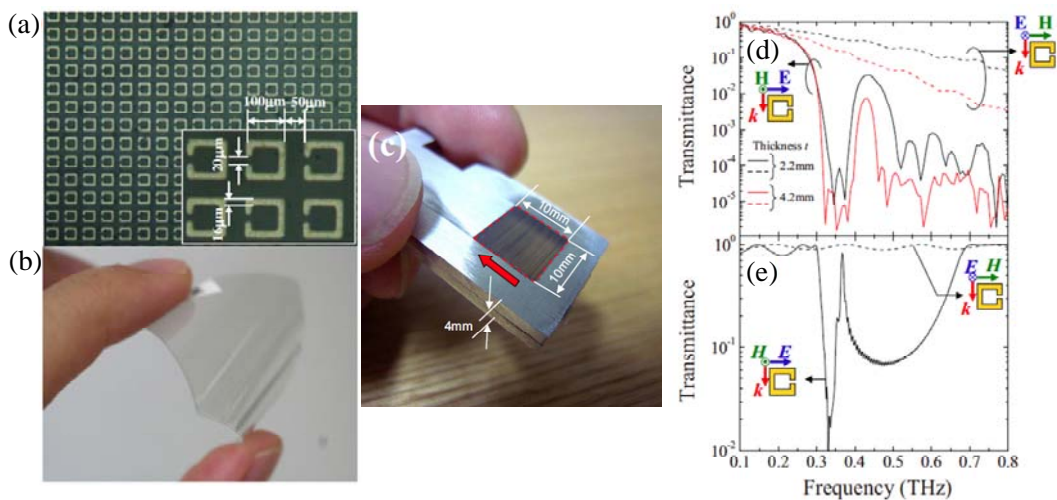


図3 (a) 分割リング共振器, (b) PETフィルム基板を用いたメタマテリアルシート, (c) メタマテリアルシートを積層した3次元メタマテリアル, (d) 3次元メタマテリアルの透過スペクトル, (e) メタマテリアルの透過スペクトルシミュレーション

上記とは異なるメタマテリアルの作製方法として、スーパーインクジェットプリンタ(SIJ)法を大阪大学との共同研究で行った。この方法では、1 フェムトリットル単位で液滴を吐出することができ、それにより約 1 ミクロンの精度で描画することができる。インクとして、金属微粒子含有インクを用いることができ、そのため本研究の目的であるメタマテリアルを作製することができる。SIJ のメリットは、フォトリソグラフィよりも簡便に複雑な形状の試料を作製することができる点である。

(3) フラクタルメタマテリアル

フラクタル構造をメタマテリアルのユニットセルとして使用することによって、SRR には無い特性が表れることを見いだした。図 4(a)に、作製したフラクタルメタマテリアルの模式図を示す。H 型の形状の相似形が、各 4 隅に取り付けられることによってフラクタルを形成している。透過スペクトルには、このフラクタル形状による共鳴透過ピークが観測される。ユニークな点として、フラクタルレベルが増加していくと、透過ピークの周波数が低周波数側にシフトしていくことが観測された(図 4(b))。さらに、共鳴周波数での電場分布を観測すると(図 4(c)), 共鳴モードに起因する電場局在が観測されるが、その局在形状がフラクタルレベルに関わらずほぼ等しくなっている。これは、共鳴波長に対する局在面積がより小さくなっていることを意味しており、高効率な近接場プローブなどへの応用展開が期待される結果であると考えている。

また自己相似形により、マルチ周波数で共鳴が生じるといったフラクタルの特性を利用して、テラヘルツ波放射用の光伝導アンテナを作製

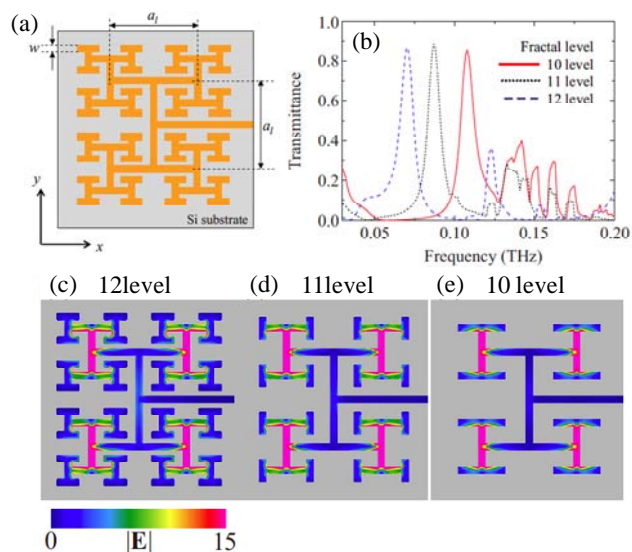


図4 (a) フラクタルメタマテリアルのユニットセル, (b) フラクタルメタマテリアルの透過スペクトル, (c)-(e) 各ピーク周波数における電場分布

した。図 5(b)の挿入図に、作製したフラクタル光伝導アンテナを示す。図 5(a)と(b)に、フラクタル光伝導アンテナからの、放射波形とその周波数スペクトルを示す。通常のダイポール型の光伝導アンテナとは異なり、幾つかの特定の周波数において共鳴的な放射ピークが観測されている。これらの放射ピークは、図 4(b)で観測されたフラクタルの電気共鳴に対応するものである。また、一般的に放射強度が強いと言われているボウタイアンテナと比較すると、共鳴ピークの強度で 2 倍程度大きくなることが観測された。テラヘルツ波技術の応用展開として、必ずしもブロードな周波数領域が必要なものばかりでなく、ある特性の周波数またはある特性の複数の周波数のテラヘルツ波のみが必要となることも考えられる。本研究成果は、そのような応用展開において、テラヘルツ放射素子のアンテナ設計の一つの指針となることが期待される。

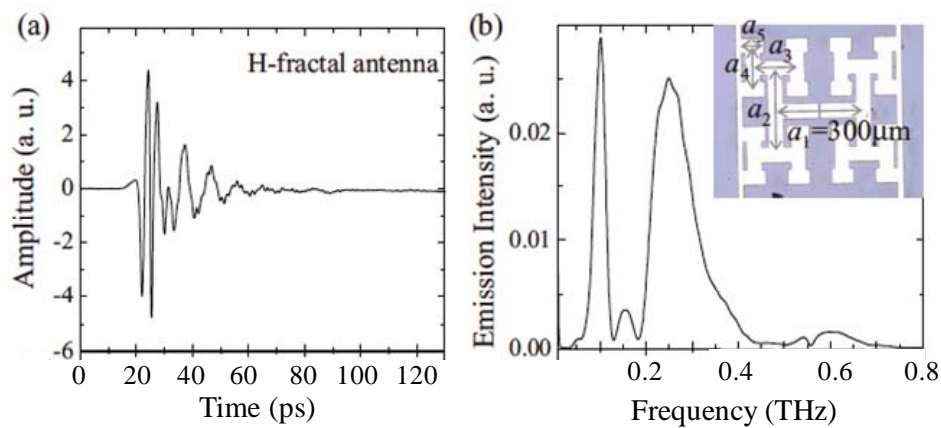


図5 フラクタル光伝導アンテナから放射されたテラヘルツ波の (a) 時間波形と (b) 放射スペクトル

3. 今後の展開

- (1) プラズモニック結晶において、今後は完全導体上に励起される表面波の特性を制御していこうと考えている。そのための方法の一つとして、擬似的な表面プラズモン(Spoof SPP)と呼ばれる概念が挙げられる。この概念では、波長よりも十分に小さなサブ波長の開口構造によって、金属面全体の有効誘電率を変化させることができる。それにより、表面波の金属面内での分散関係を制御することが可能になり、共鳴周波数や群速度、表面広がり長などの特性を制御することができると考えられる。
- (2) 3次元メタマテリアルにおいて、まだ負屈折率物質の作製には成功していない。今後は、テラヘルツ領域で負屈折を示す、3次元バルクメタマテリアルの作製を目指す。そのために、本研究で作製した SRR の 3次元メタマテリアルを有効透磁率の制御用として利用する。SRR の 3次元メタマテリアルの有効透磁率パラメータを測定することにより、負の透磁率を明確に示す試料の作製を行い、最終的に負の誘電率物質と組み合わせることにより、負屈折率物質の実現を目指す。
負屈折率物質以外に、メタマテリアルの 3次元化が要求されるものが幾つかある。その一つとして透明マントに代表される座標変換媒質がある。本研究では、負屈折率物質以外に、未だ実現されていないテラヘルツ領域の座標変換媒質の作製を行っていく予定である。
- (3) 光伝導アンテナにメタマテリアルのユニットセルを適用するというアイデアを今後も発展させ、従来のテラヘルツ波放射用光伝導アンテナではできなかったような特性を持つ、放射素子の開発を行っていく。

4. 自己評価

- (1) プラズモニック結晶に関しては、当初の目的である異常透過現象のメカニズムの解明を行い、長い間論戦が行われていた議論に、明確な解答のひとつを与えたものと考えている。また、この異常透過の応用展開の目的に対しては、微量物質の高感度なセンシング応用を提案・実証した。この成果は、2件の賞を受賞しており、対外的にも重要であるといえると考えている。
- (2) 3次元のメタマテリアルを作製し、テラヘルツ領域において純粋な磁気共鳴を観測する目的は果たしたと考えている。しかし、その次の目標であった、負屈折率物質の実現は残念ながら達成されていない。これに関しては、現在幾つかのメタマテリアル構造を作製し、試作している段階であり、今後早急に推進していくべき課題である。
- (3) フラクタル構造を用いたメタマテリアルにおいて、当初の目的である、フラクタルに特異的な光学特性を見いだしており、かつ光伝導アンテナに応用することによってマルチ周波数で共鳴放射するテラヘルツ放射素子を作製した。

5. 研究総括の見解

これまでになかった新たな光学特性を持つプラズモニック結晶、メタマテリアルなど人工的な金属微細構造作成技術を開発し、その特性解明と新しい物質の提案を目標に研究を行なった。下記3点の成果を得たが、特に、金属開口アレイにおいて観測される異常透過現象のメカニズム解明は、高い評価を得て2件の賞を受賞している。

(1) プラズモニック結晶異常透過現象の解明とセンシング技術の提案:

金属開口アレイにおいて観測される異常透過現象は、表面波励起メカニズムと局所共鳴メカニズムにより構成され開口サイズによってそのメカニズムが移り変わることを実証

し、完全導体の開口アレイにおける表面波励起メカニズムの解明に成功した。また、この異常透過を用いた“微量物質の高感度なセンシング応用”を提案しカゴメ格子ユニットセルとして実証した。

(2)メタマテリアル:

微細構造のサイズがサブ波長サイズの2次元メタマテリアルシートを積層する構造で3次元の分割リング共振器(SRR)メタマテリアルを作製し、これまで観測することが出来なかった入射磁場による純粋な磁気共鳴の観測に成功した。

(3)フラクタルメタマテリアル:

光伝導アンテナとして用いることの可能なフラクタルに特異的な光学特性見出し、マルチ周波数で共鳴放射するテラヘルツ放射素子を作製した。また自己相似形により、マルチ周波数で共鳴が生じるというフラクタルの特性を利用して、テラヘルツ波放射用の光伝導アンテナも作製した。テラヘルツ放射素子のアンテナ設計の一つの指針となることが期待される。

研究成果は幅広く、15編もの原著論文に纏められているが、その高い評価は2件の受賞、多数の招待講演に結びついている。

今後、プラズモニック結晶での表面波特性制御、テラヘルツ領域で負屈折を示す3次元バルクメタマテリアルの作製、光伝導アンテナへのメタマテリアルユニットセル適用、など新光機能素子への応用を切り拓くことを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1.	F. Miyamaru, Y. Saito, M. W. Takeda, B. Hou, L. Liu, W. Wen, and P. Sheng, "Terahertz electric response of fractal metamaterial structures", <i>Physical Review B</i> , vol. 77, p. 045124 (2008).
2.	F. Miyamaru and M. W. Takeda, "Coupling between localized resonance and excitation of surface waves in metal hole arrays", <i>Physical Review B</i> , vol. 79, p. 143405 (2009).
3.	F. Miyamaru, Y. Saito, M. W. Takeda, L. Liu, B. Hou, W. Wen, and P. Sheng, "Emission of terahertz radiations from fractal antennas", <i>Applied Physics Letters</i> , vol. 95, p. 221111 (2009).
4.	F. Miyamaru, S. Kubota, K. Taima, K. Takano, M. Hangyo, and M. W. Takeda, "Three-dimensional bulk metamaterials operating in the terahertz range", <i>Applied Physics Letters</i> , vol. 96, p. 081105 (2010).
5.	F. Miyamaru, M. Kamijyo, K. Takano, M. Hangyo, H. Miyazaki, and M. W. Takeda, "Characteristics and generation process of surface waves excited on a perfect conductor surface", <i>Optics Express</i> , vol. 18, p. 17576 (2010).

(2)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

受賞

1. コニカミノルタ画像科学奨励賞, “テラヘルツ光による癌診断イメージングシステムの開発” (団体名:コニカミノルタ画像科学振興財団)
2. The 2nd THz Award, “Highly sensitive terahertz imaging with plasmonic crystals” (団体名:European Optical Society)