

令和 3 年 6 月 25 日現在

機関番号：14301

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化）

研究期間：2018～2020

課題番号：17KK0133

研究課題名（和文）光マネジメント科学コンソーシアム

研究課題名（英文）Light management consortium

研究代表者

村井 俊介（Shunsuke, Murai）

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：20378805

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 9,600,000円

渡航期間： 7ヶ月

研究成果の概要（和文）：本プロジェクトの研究期間でナノ粒子アレイ（＝ナノアンテナ）と励起子の強結合状態の実現と制御に関する一貫した研究を行い、試料作製と解析手法、数値計算を含む設計手法のそれぞれに関して大きな進展があった。主な成果としては、ナノアンテナ蛍光体の量子収率測定法の確立、シリコンナノ粒子ナノアンテナにおける磁気双極子格子共鳴の初めての実験的観測、磁気双極子格子共鳴をもちいた強結合状態の実現、面外磁気双極子によるBIC状態の報告、強結合状態を実現するための最適なアレイ構造を導く群知能を援用した最適化シミュレーション技術の確立が挙げられる。

3年間の研究成果は9報の論文にまとめ、現在も複数の論文を執筆中である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学術的にはシリコンナノ粒子における磁気双極子格子共鳴の初めての実験的観測、磁気双極子格子共鳴をもちいた強結合状態の実現は光と励起子の強結合状態の研究の新たな舞台を提供することができ、波及効果が期待できる。社会的には、ナノアンテナ蛍光体の量子収率測定法の確立は、ナノアンテナ蛍光体の社会実装に向けた大きな一歩である。量子収率と発光強度、両面からの評価により、ナノアンテナ蛍光体の実力を照明をはじめとする多くのコミュニティに認知させ、非コヒーレント指向性点光源として応用展開を図っていく予定である。

研究成果の概要（英文）：During the research period of this project, we conducted consistent research on the realization and control of strong coupling states of nanoparticle arrays (= nanoantennas) and excitons, and made great progress in each of sample fabrication, analysis and design methods including numerical calculations. Major achievements include the establishment of a quantum yield measurement method for nanoantenna phosphors, the first experimental observation of magnetic dipole lattice resonance in silicon nanoparticle arrays, the realization of a strong coupling state using magnetic dipole lattice resonance, the report of the BIC state by the out-of-plane magnetic dipole and the establishment of the optimization simulation technology using a particle swarm optimization algorithm to derive the optimum array structure to realize the strong coupling state can be mentioned.

The results of this three years of research have been compiled into nine articles, and several articles are in progress.

研究分野：材料科学

キーワード：プラズモニクス 強結合状態 ナノアンテナ 光マネジメント科学 格子共鳴 Mie共鳴 非コヒーレント指向性光源 磁気双極子

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 F - 19 - 2

1. 研究開始当初の背景

基課題(基盤研究B「プラズモニックアレイの科学の深化」(FY2016-2018))のもとになったのが、2011-2012年のオランダ留学における Jaime Gomez Rivas との共同研究成果である、AI ナノ粒子アレイを用いた高効率蛍光体からの60倍の発光強度の増強です(Light: Sci. Appl. 2,5, e66(2013))。この報告は、金属ナノ構造では高効率蛍光体からの発光増強は不可能と考えていた研究コミュニティの常識を覆し、研究の新たなトレンドとなりました。基础研究では、この発光増強の機構を明らかにするとともに、将来の社会実装を狙い導電性酸化物や窒化物など、非コンベンショナルかつ廉価で耐久性の高い実用的プラズモニック材料の開発を進めていました。2016年までの研究で、研究分担者の先進材料と研究代表者の高精度プラズモニックアレイを組み合わせた実験系で発光強度増強の機構を明らかにし、増強を得るための構造設計指針を示しました。

しかしながら、研究の中で、実験的に得られた発光増加量と理論上可能な最大の増加量にまだ3倍もの差があることがわかってきました。この差を埋めるにはプラズモン材料に限定せず、半導体や誘電体を含めた包括的な検討が必要であること、また得られるであろう知見を集約すれば「光マネジメント科学」と呼べる新たな体系が構築できると着想しました。この着想に基づき、本国際共同研究では、代表者が高精度アレイを手に入れた Jaime Gomez Rivas グループに参加し、先端の光解析を行うとともに、関連グループと連携し光マネジメント科学の要素技術と応用の開発を行いました。

2. 研究の目的

上述のように、研究代表者はプラズモニックアレイの指向性発光の世界的フロントランナーであり、先端技術を持っています。このイノベーションの芽を大きく育み、多くのフォロアーを引張る成果を継続的に国際的に発信することを研究の目的としました。そのために研究代表者をハブとして、国境の垣根を超えた大きな連携を作りました。国際共同研究において、基础研究における分担者(石井智@物質・材料研究機構(NIMS)、中西貴之@北海道大学、徳留靖明@大阪府立大学)と研究代表者からなる研究グループに Jaime Gomez Rivas (申請時はオランダ基礎エネルギー研究所、現在はアイントフォーヘン工科大学に異動、装置もすべて移動済みで研究目的に変更なし)を巻き込み、プラズモニックアレイの光学特性の本質を浮彫りにすることを試みます。Gomez Rivas はプラズモニックアレイを含む光学ナノ材料の特性解析の先端技術を持ち、ナノフォトニクスコミュニティにおける確立された研究者です。国外ではさらにアメリカパデュー大学の A. Kildishev とスペインセビリア材料科学研究所(CSIC)の H.Miguez と連携しました。Kildishev はプラズモニック構造による発光増強への計算科学アプローチで先端技術を持ち、H. Miguez は光学材料の先端科学者です。Gomez Rivas が所属するアイントフォーヘン工科大学には欧州を中心に各国から気鋭の研究者が多く集まっており、将来の連携も見込める。これらの国内外の研究グループを巻き込んで国際的に成果を発信することで、光マネジメント科学の研究分野のイニチアチブを握りたいと考えました。

3. 研究の方法

研究代表者が持つ最先端のプラズモニックアレイ作製技術をコア技術とし、光マネジメント科学の学理確立に向けて以下の項目を研究しました。

A: ナノ粒子アレイの基礎特性 実験とシミュレーションを組み合わせ、基礎特性に関する学理確立を目指した。

A-1: 状態密度解析 プラズモニックアレイのどこにどれだけの光エネルギーが存在するかを光

の波長以下の分解能で計測することで、省エネルギー・高効率なエネルギー変換のプラットフォーム設計の肝となる光の状態密度情報を得る。そのためにフーリエ光学顕微鏡観察を行う。これらより実験的にアレイの光基礎特性を固める。

A-2 発光過程のシミュレーション FDTDと4準位系のレート方程式を組み合わせたシミュレーションにより、状態変化に起因する発光挙動の変化を追う。

B: ナノ粒子アレイの応用 研究期間内に以下の研究を完成、発表し、期間後のコンソーシアム拡大の呼び水とする

B-1: 高効率照明・レーザー 先端強発光材料とプラズモニックアレイおよび先端光学解析を掛け合わせ、高効率照明・レーザーを作製する

B-2: センサー 先端センシング材料とプラズモニックアレイおよび先端光学解析を掛け合わせ、高効率センサーを作製する

C: その他関連技術の開発

4. 研究成果

2018年度: 研究代表者は金属ナノ粒子アレイのナノ加工技術において先端技術を有し、他方渡航先の海外共同研究者は先端光学測定技術を有します。この点において両者は相補的な関係にあり、ナノ加工基板供給と先端光学測定のサイクルに基づく共同研究をおこないました。光マネジメント科学の学理確立に向けて、特にアレイを省エネルギー・高効率なエネルギー変換のプラットフォームとして利用するために、光の状態密度制御と、発光中心の特性の自在なコントロール技術の確立を目標にしました。これらが実現すると、アレイ上に置いた光機能性材料の機能の飛躍的上昇により、低閾値レーザーや高効率光検出器などのデバイス開発につながります。2018年度は1月15日から断続的にオランダへ渡航し、以下の項目を研究しました。

A: ナノ粒子アレイの基礎特性 - 実験とシミュレーションを組み合わせ、基礎特性に関する学理確立を目指した。

A-1: 状態密度解析 プラズモニックアレイのどこにどれだけの光エネルギーが存在するかを光の波長以下の分解能で計測することで、省エネルギー・高効率なエネルギー変換のプラットフォーム設計の肝となる光の状態密度情報を得ました。そのために渡航前に代表者と海外共同研究者の議論によりプラズモニックアレイの設計を行い、京都大学において作製しました。プラズモニックアレイを持って代表者が渡蘭し、派遣先にてフーリエ光学顕微鏡による光学状態の解析を行いました。Siナノ粒子アレイにおける特異な光学状態の実験的な観察に初めて成功しました。この成果はプラズモニクスを補完するナノ光学の発展に重要です。

2019年度: 状況報告書に記した昨年度の研究を受け、2019年度は以下の研究を行いました。得られた成果を原著論文として報告しました。

A: ナノ粒子アレイの基礎特性

A-1: Siナノ粒子アレイを中心に光の状態密度を調べ、アレイによる状態密度マネジメント技術確立を試みました。アレイ上に乗せた発光中心の発光強度、寿命、指向性を自在に制御する実験的手法を確立し、量子収率の測定手法を確立させました。また、特定の条件で光閉込め効率が非常に大きくなることを見出しました。これはアレイを用いた光マネジメントに重要な結果です。

A-2: アレイに高濃度の色素薄膜を塗布することでポラリトンとアレイの光学モードの強結合状態を実現し、ポラリトニックデバイス応用を指向した基礎特性の解析をおこなった。

B: ナノ粒子アレイの応用 - 以下の研究を完成、発表し、帰国後のコンソーシアム拡大の呼び水とします。

B-1: 高効率レーザー 先端強発光材料アレイおよび先端光学解析を掛け合わせ、高効率レーザーを作製するための材料選択、構造設計を検討した。

これらの研究活動に併せて京都大学の田中勝久研究室で指導する学生をアイントフォーヘン工科大学で実験させるなど、交流を活発にし、彼らの国際性を養う教育を施した。

2020年度: 報告書に記した昨年度の研究を受け、2020年度は以下の研究を行った。得られた成果を原著論文として報告した。

B: ナノ粒子アレイの応用

B-1: 高効率レーザーポラリトニック状態の解析を詳細に行った。

C: 強結合状態を実現するための最適なアレイ構造を導くための群知能を援用した最適化シミュレーション技術を確立した。

本プロジェクトの研究期間でナノ粒子アレイと励起子の強結合状態の実現と制御に関する一貫した研究を行い、試料作製と解析手法、数値計算を含む設計手法のそれぞれに関して大きな進展があった。主な成果としては、シリコンナノ粒子における磁気双極子格子共鳴の初めての実験的観測、磁気双極子格子共鳴をもちいた強結合状態の実現、面外磁気双極子によるBIC状態の報告が挙げられる。

3年間の研究成果は9報の論文にまとめ、現在(2021年6月)も複数の論文を執筆中である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 9件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Castellanos Gabriel W., Murai Shunsuke, Raziman T.V., Wang Shaojun, Ramezani Mohammad, Curto Alberto G., Gomez Rivas Jaime	4. 巻 7
2. 論文標題 Exciton-Polaritons with Magnetic and Electric Character in All-Dielectric Metasurfaces	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Photonics	6. 最初と最後の頁 1226 ~ 1234
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsp Photonics.0c00063	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 該当する
1. 著者名 Berghuis Anton Matthijs, Halpin Alexei, Le Van Quynh, Ramezani Mohammad, Wang Shaojun, Murai Shunsuke, Gomez Rivas Jaime	4. 巻 29
2. 論文標題 Enhanced Delayed Fluorescence in Tetracene Crystals by Strong Light Matter Coupling	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Advanced Functional Materials	6. 最初と最後の頁 1901317 ~ 1901317
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adfm.201901317	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 該当する
1. 著者名 Murai S., Noguchi K., Castellanos G. W., Wang S., Tanaka K., Rivas J. Gomez	4. 巻 9
2. 論文標題 Light Conversion Efficiency of Emitters on Top of Plasmonic and Dielectric Arrays of Nanoparticles	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ECS Journal of Solid State Science and Technology	6. 最初と最後の頁 011614 ~ 011614
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/2.0202001JSS	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 該当する
1. 著者名 Bai Ping, ter Huurne Stan, van Heijst Erik, Murai Shunsuke, Gomez Rivas Jaime	4. 巻 154
2. 論文標題 Evolutionary optimization of light-matter coupling in open plasmonic cavities	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 134110 ~ 134110
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0042056	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 該当する

1. 著者名 Wang Shaojun, Raziman T.V., Murai Shunsuke, Castellanos Gabriel W., Bai Ping, Berghuis Anton Matthijs, Godiksen Rasmus H., Curto Alberto G., Gomez Rivas Jaime	4. 巻 124
2. 論文標題 Collective Mie Exciton-Polaritons in an Atomically Thin Semiconductor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 19196 ~ 19203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c02592	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 該当する

1. 著者名 Murai Shunsuke, Castellanos Gabriel W., Raziman T. V., Curto Alberto G., Rivas Jaime Gomez	4. 巻 8
2. 論文標題 Enhanced Light Emission by Magnetic and Electric Resonances in Dielectric Metasurfaces	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 1902024 ~ 1902024
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adom.201902024	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 該当する

1. 著者名 Murai Shunsuke, Cabello-Orlmo Elena, Kamakura Ryosuke, Calvo Mauricio E., Lozano Gabriel, Atsumi Taisuke, Gomez Hernan, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 124
2. 論文標題 Optical Responses of Localized and Extended Modes in a Mesoporous Layer on Plasmonic Array to Isopropanol Vapor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 5772 ~ 5779
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b10999	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 該当する

1. 著者名 Murai Shunsuke, Oka Saho, Azzam Shaimaa I., Kildishev Alexander V., Ishii Satoshi, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 27
2. 論文標題 Enhanced absorption and photoluminescence from dye-containing thin polymer film on plasmonic array	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 5083 ~ 5083
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.27.005083	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 該当する

1. 著者名 Murai Shunsuke, Abujetas Diego R., Castellanos Gabriel W., S?nchez-Gil Jos? A., Zhang Feifei, Rivas Jaime G?mez	4. 巻 7
2. 論文標題 Bound States in the Continuum in the Visible Emerging from out-of-Plane Magnetic Dipoles	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Photonics	6. 最初と最後の頁 2204 ~ 2210
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsp Photonics.0c00723	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 該当する

〔学会発表〕 計2件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Gabriel W Castellanos, Shunsuke Murai, TV Raziman, Shaojun Wang, Mohammad Ramezani, Alberto G Curto, Jaime Gomez Rivas
2. 発表標題 Strong light-matter coupling in dielectric metasurfaces
3. 学会等名 , EPJ Web of Conferences (国際学会) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shunsuke Murai, Jaime Gomez Rivas
2. 発表標題 Plasmonic and Dielectric Metasurfaces for Solid State Lighting
3. 学会等名 PRIME2020 (ECS, ECSJ & KECS Joint Meeting) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

Gomez Rivas Lab https://surfacephotonics.org/ 京都大学大学院工学研究科材料化学専攻応用固体化学研究室 http://dipole7.kuic.kyoto-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
主たる渡航先の主たる海外共同研究者	ゴメスリバス ハイム (Gomez-Rivas Jaime)	アイントフォーヘン工科大学・応用物理・教授	

	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
その他の研究協力者	ミゲス エルナン (Miguez Hernan)	セビリア材料研究所・光学・教授	
その他の研究協力者	キルディシェフ アレクサンダー (Kildishev Alexander)	パデュー大学・電子工学・准教授	

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			
オランダ	アイントフォーヘン工科大学			
スペイン	セビリア材料研究所 (CSIC)			
米国	パデュー大学			