

令和 4 年 5 月 7 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K22058

研究課題名(和文)プラズモニックメソグレーティングの異常光透過特性の解明とナノ偏光フィルターの作製

研究課題名(英文) Plasmonic/dielectric nanostructures for heat/light managements inspired by the plasmonic meso-grating

研究代表者

村井 俊介 (MURAI, SHUNSUKE)

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) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：金属メソグレーティング構造の特異な偏光フィルター作用から着想し、光/熱マネジメントに資する金属や誘電体ナノ構造の研究を行った。まず光-熱変換を積極的に利用する、アスペクト比の大きな(溝の深い)トレンチ構造およびナノロッドアレイ構造を開発した。また窒化チタンを利用することで可視光の幅広い波長範囲で光-熱変換を実現できることを示した。さらに背の高いアルミニウムナノ粒子が面内と面外のプラズモニックモードの干渉によりファノ型の共鳴を示し、面外に非対称な光散乱を起こすことを見出し、実験にて実証した。さらに散乱光を制御する新しい構造として単位格子に異なる2つの格子点を持つ非ブラベ型ナノアンテナを作製した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

得られた成果は、代表者が推し進める光/熱マネジメント技術の確立に重要である。まず、高アスペクト比のトレンチ/ロッドアレイ構造は、光-熱変換が高効率で起こり、熱を積極的に利用する応用にとって重要である。また熱を逃がす系も設計可能であり、こちらは加熱が望ましくない応用に有効である。さらに干渉を利用した異方性光散乱の発現に関する研究成果は、代表者が進める、必要な方向だけに光を放つナノアンテナ蛍光体の開発に重要である。

研究成果の概要(英文)：Inspired by the filter action of the metal meso-grating structure, we studied metal and dielectric nanostructures that contribute to optical / thermal management. We first developed high-aspect-ratio (deep groove) trench and nanorod array structures, where we actively utilize photothermal conversion. It was also shown that light-heat conversion can be realized in a wide wavelength range of visible light by using titanium nitride. Furthermore, we found that tall aluminum nanoparticles exhibited the Fano-type resonance due to in-plane and out-of-plane plasmonic mode interference, causing out-of-plane asymmetric light scattering. Furthermore, as a new structure for controlling scattered light, a non-Bravais type nano-antenna having two different lattice points in a unit lattice was manufactured.

研究分野：材料科学, プラズモニクス, ナノ光学

キーワード：プラズモニクス メソ構造 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 C - 19 , F - 19 - 1 , Z - 19 (共通)

1 . 研究開始当初の背景

代表者はさきがけ研究(2013 年 ~ 2016 年)においてメソスケールの金属周期構造(= プラズモニックメソグレーティング)が特異な光学特性をもたらすとの直観に基づき研究をすすめ , プラズモニックメソグレーティングに励起される表面プラズモンを透過型電子顕微鏡下でのカソードルミネッセンス(TEM-CL)を用いて調査した . TEM-CL を用いたプラズモニクス研究で顕著な実績を持つ三宮工(東工大)・斉藤光(九大)と共

同でさきがけ研究期間終了後も調査を続けた結果 , 2017 年偶然にも金属メソグレーティングが近接する光源に対し , グレーティングに直交する直線偏光のみを選択的に通過させる偏光フィルターとして作用することを見出した(図 1) . 金属を付ける前のグレーティング基板においては偏光選択性が生じないことから , この現象には表面プラズモンがかかわっていると考えられた .

2 . 研究の目的

本研究の当初の目的は周期 40 ~ 60 nm 程度の金属メソグレーティング構造の特異な偏光フィルター作用に関するものであった . 金属のグレーティング構造は分光器の回折格子として 100 年以上前から研究し尽くされているが , 周期が 100 nm 以下のグレーティングは光回折を起こすには周期が短すぎるため , 十分に研究されてこなかった . 応募者はさきがけ研究(2013 年 ~ 2016 年)においてメソスケールの金属周期構造(= プラズモニックメソグレーティング)が特異な光学特性をもたらすとの直観に基づき研究を

すすめ , 2017 年偶然にも金属メソグレーティングが近接する光源に対し , グレーティングに直交する直線偏光のみを選択的に通過させる偏光フィルターとして作用することを見出した(図 1) . 金属を付ける前のグレーティング基板においては偏光選択性が生じないことから , この現象には表面プラズモンがかかわっていると考えられる . 類似の異常透過現象が表面プラズモンと光回折の両者の作用により起こることが知られているが , 我々の系は 40~60 nm 周期であり , 光の波長より十分小さく , 先行研究の機構では説明できない . また遠方より照射される平面波を仮定した電磁波シミュレーションでも再現できておらず , 周期が非常に小さい構造で , 近接する光源にのみ起こる特殊な現象だと推察している . この現象の機構を明らかにすることを本研究の目的とする .

3 . 研究の方法

機構解明のために , まず初年度は電磁波シミュレーションにより現象を再現することを行う . 所望の系を計算するためには , 計算領域中に光源を組み込むことが必要であるが , 信頼性の高いシミュレーションができるグループは限られる . 本研究では , これまでに Troyes 工科大学(フランス)で学位を取得した F. Zhang をポスドクとして雇い , 計算を担当させる . 並行して測定に利用する

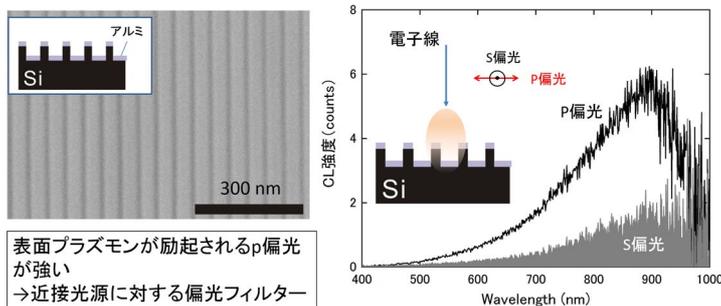


図1:金属メソグレーティングの偏光選択的な光透過(研究開始時の予備検討)

TEM-CL, SEM-CL の光学系を整備し, 2 年目以降の実験に備える。現象再現ののち, 2 年目および 3 年目には計算から予測されるフィルター効果に最適な構造を実際に作製し, 効果を測定することを計画した。構造はこれまでの予備検討で使用してきた京都大学ナノテクノロジーハブ拠点をはじめとする全国に散らばる微細加工プラットフォーム(文科省管轄)で作製し, 測定は予備検討で使用し, CL を用いたプラズモニクスの研究において世界最高クラスの実績がある東工大の TEM-CL, 京都大の電子エネルギー損失分光(TEM-EELS)および九州大の SEM-CL でおこなう。電子線を用いた局所励起はメソスケールのプラズモン解析に必須であり, これら 3 つの装置はプラズモンのエネルギーと空間分布に関して相補的な情報を与える。共同で測定を行う三宮工(東工大: 世界最先端の TEM-CL 装置を研究室において維持・管理・操作している。特に角度分解の CL マッピングについて最先端の技術を有する), 斉藤光(九大: TEM-EELS, SEM-CL の世界最先端の技術を有するエキスパート)の 3 名は国際共同研究強化「光マネジメント科学コンソーシアム」に参画しており, 連携を構築済である。

4. 研究成果

当初の計画を足がかりに研究を進め, 3 年間で得た成果を 12 報の論文と 2 つの学会発表として報告した。まず R1 年度は予備検討結果の機構解明のために, 電磁波シミュレーションにより現象を再現することを試みた。FDTD (Lumerical) を用いてシミュレーションを行ったところ, 反射率スペクトルは実験結果を再現できた。それに対し CL スペクトルはグレーティングにより発光が抑制される結果となり, 実験結果の再現には至らなかった。しかし当初の構造から着想して, 高アスペクト比の構造を設計・特性評価することを並行して行い, 背の高いアルミニウムナノ粒子からなる周期構造の系に関する研究が大いに進んだ。本系における面外異方的な散乱は予想外の結果であったが, 代表者が並行して研究するプラズモニック蛍光体にとって非常に好ましい特性であり, 両者を組み合わせさらに研究を発展させる足掛かりを作ることができた。

さらに R2 年度の研究では, 周期 40 ~ 60 nm 程度の金属メソグレーティング構造の特異な偏光フィルター作用から着想し, 新規構造としてグレーティング構造の特異な光熱変換効果について研究した。まず光 - 熱変換を積極的に利用するため, 局所的かつ高効率に光 - 熱変換が起こるナノ構造設計を行った。アスペクト比の大きな(溝の深い)トレンチ構造およびナノロッドアレイ構造が熱伝導を抑制し, 光照射部にエネルギーを閉じ込め局所的な加熱を実現するのに好適であることを見出した。また構造を作製する材料として窒化チタンを利用することで可視光の幅広い波長範囲で光 - 熱変換を実現できることを示した。これはナノ熱マネジメント分野で重要な要素技術である。さらに高アスペクト比のプラズモニックナノ粒子が面内と面外のプラズモニックモードの干渉によりファノ型の共鳴を示し, 面外に非対称な光散乱を起こすことを理論的に見出し, 実験にて実証した。これは高効率, 極薄の光フィルター実現に向けた重要な成果であり, 代表者が並行して研究するプラズモニック蛍光体の高性能化にとっても有用である。また並行してプラズモニック構造で発生する光 - 熱変換について評価し, プラズモニックモードにより発光を増強する場合, 熱伝導率の高い基板を用いることで温度上昇が抑制できることを見出した。これは熱失活抑制の手がかりとなり, プラズモニック蛍光体の高性能化へ重要な知見である。

R3 年度は R2 年度の研究を受け, 以下の研究を行った。まず, ファノ共鳴と熱マネジ

メントを利用した高性能ナノアンテナ蛍光体の開発に取り組んだ。蛍光体と面外異方性散乱を示すナノアンテナアレイと蛍光体を組み合わせ、特定方向へ光を優先的に放つ構造を設計・作製した。ナノアンテナ素材として可視光に光吸収を持たないTiO₂を用い、面外前方方向へ優先的に光散乱を示すナノアンテナを作製した。蛍光体と組み合わせた蛍光測定の結果、これまでのアルミニウムナノアンテナ蛍光体と比べ前方蛍光強度が高まった。また光吸収がないことから蛍光体の温度上昇の問題も解決された。得られた成果を論文にまとめ投稿中である。また、これまでの結果を踏まえて散乱光を制御する新しい構造として単位格子に異なる2つの格子点を持つ非ブラベ型ナノアンテナを作製し、光学特性と発光の制御を行った。単位格子の対称性に応じて連続スペクトル中の束縛状態（Bound States in the Continuum, BIC）が観察され、発光測定ではQuasi-BICモードと結合した鋭い発光ピークを得られた。得られた成果を論文にまとめ投稿中である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Gao Yuan, Murai Shunsuke, Shinozaki Kenji, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 4
2. 論文標題 Up-conversion Luminescence Enhanced by the Plasmonic Lattice Resonating at the Transparent Window of Water	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 2999 ~ 3007
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.0c01826	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 Murai Shunsuke, Zhang Feifei, Aichi Koki, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 129
2. 論文標題 Oxidation pathway to the titanium dioxide metasurface for harnessing photoluminescence	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 163101 ~ 163101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0046637	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 Zhang Feifei, Martin Jerome, Murai Shunsuke, Adam Pierre-Michel, Plain Jerome, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 29
2. 論文標題 Evidence of the retardation effect on the plasmonic resonances of aluminum nanodisks in the symmetric/asymmetric environment	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 14799 ~ 14799
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.425136	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 Agata Kenichi, Murai Shunsuke, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 118
2. 論文標題 Stick-and-play metasurfaces for directional light outcoupling	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 021110 ~ 021110
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0034115	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 Higashino Makoto, Murai Shunsuke, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 124
2. 論文標題 Improving the Plasmonic Response of Silver Nanoparticle Arrays via Atomic Layer Deposition Coating and Annealing above the Melting Point	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 27687 ~ 27693
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c09112	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 Liu Libei, Zhang Feifei, Murai Shunsuke, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 3
2. 論文標題 Loss Control with Annealing and Lattice Kerker Effect in Silicon Metasurfaces	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Photonics Research	6. 最初と最後の頁 2100235 ~ 2100235
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adpr.202100235	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 MURAI Shunsuke, INOUE Yuto, TANAKA Katsuhisa	4. 巻 69
2. 論文標題 Fabrication of Flexible Sticker of Si Metasurfaces by a Transfer Process	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy	6. 最初と最後の頁 87 ~ 90
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2497/jjspm.69.87	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 MURAI Shunsuke, TANAKA Katsuhisa	4. 巻 69
2. 論文標題 Improving Metasurface Performance by Nano Metallurgy Process	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy	6. 最初と最後の頁 63 ~ 67
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2497/jjspm.69.63	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 Murai Shunsuke, Agata Kenichi, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 129
2. 論文標題 Photoluminescence from an emitter layer sandwiched between the stack of metasurfaces	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 183101 ~ 183101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0047352	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 Zhang Feifei, Atsumi Taisuke, Xu Xiaolun, Murai Shunsuke, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 11
2. 論文標題 Tunable Faraday rotation of ferromagnet thin film in whole visible region coupled with aluminum plasmonic arrays	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanophotonics	6. 最初と最後の頁 275 ~ 288
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1515/nanoph-2021-0327	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 Murai Shunsuke, Zhang Feifei, Aichi Koki, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 129
2. 論文標題 Oxidation pathway to the titanium dioxide metasurface for harnessing photoluminescence	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 163101 ~ 163101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0046637	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 Gao Yuan, Murai Shunsuke, Shinozaki Kenji, Tanaka Katsuhisa	4. 巻 4
2. 論文標題 Up-conversion Luminescence Enhanced by the Plasmonic Lattice Resonating at the Transparent Window of Water	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 2999 ~ 3007
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.0c01826	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 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 L. Liu, F. Zhang, S. Murai, K. Tanaka
2. 発表標題 Loss reduction via annealing and lattice Kerker effect in silican metasurfaces
3. 学会等名 14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM 14) including Glass & Optical Materials Division 2021 Annual Meeting (GOMD 2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 L. Liu, F. Zhang, S. Murai, K. Tanaka
2. 発表標題 Loss control via annealing and directional scattering in silicon metasurfaces
3. 学会等名 第62回ガラスおよびフォトニクス材料討論会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>京都大学田中勝久研究室 村井俊介 http://dipole7.kuic.kyoto-u.ac.jp/?page_id=167</p>
--

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	<p>斉藤 光 (Hikaru Saito) (50735587)</p>	<p>九州大学・総合理工学研究院・助教 (17102)</p>	

6. 研究組織（つづき）

	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	三宮 工 (Takumi Sannomiya) (60610152)	東京工業大学・物質理工学院・准教授 (12608)	

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			
フランス	トロア工科大学			