

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：82108

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13328

研究課題名(和文)ギャップ駆動メタ表面による高輝度熱放射光のMHz帯超高速変調の実証

研究課題名(英文)Fast modulation of intense thermal emission by gap-movable metasurfaces

研究代表者

宮崎 英樹 (Miyazaki, Hideki)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・グループリーダー

研究者番号：10262114

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：機械的に極微小変位するギャップ駆動メタ表面により、放射率スペクトルを動的に変化可能であることを実験的に示した。波長3～4μmの中赤外光を共鳴放射する金属ストライプと金属連続膜から構成されるメタ表面のギャップを圧電素子によりわずか20～40nmだけ変位させ、放射率(吸収率)の変化を確認した。この結果は、最大100MHzの超高速振動が可能な厚み振動圧電素子を用いてメタ表面の熱放射スペクトルが動的に制御できることを示唆している。タングステンとHfO₂で同様のメタ表面を形成すれば、1000℃という高温の熱放射を10～100MHzという高速で変調可能することが可能になる。

研究成果の概要(英文)：Dynamic modulation of emissivity spectrum of a gap-movable metasurface of which the gap exhibits an ultra-small mechanical translation was experimentally demonstrated. The gap in a metasurface resonant at mid-infrared region around 3-4 micrometers made of metallic stripes and a metallic continuous mirror film was modulated by only 20-40 nanometers, and the change in the emissivity (absorption) was verified. This result suggests the possibility of a dynamic control of thermal emission from a metasurface with a thickness-mode piezoelectric oscillator operable at a high frequency as high as 100 MHz. If a similar metasurface is fabricated from tungsten and HfO₂, intense thermal emitter at a high temperature as high as 1000 deg. C could be modulated at a high rate as high as 10-100 MHz.

研究分野：プラズモニクス

キーワード：マイクロ・ナノデバイス メタマテリアル メタ表面 熱放射 赤外光

1. 研究開始当初の背景

1世紀前に量子力学誕生のきっかけとなる最先端の物理であった熱放射は、2010年の日本大手メーカーでの電球の製造終了に伴い、役割を終えたかのように思われた。しかし、この数年のメタマテリアル研究により、再び最先端分野に返り咲いた。プランクの法則は、ある温度に対する単位面積当たり熱放射スペクトルの上限値(完全黒体放射)を与える。現実の物体の熱放射はそれに放射率を乗じたもので、放射率は吸収率に等しい(キルヒホッフの法則)。これは、原理的には、材料の選択により様々な放射スペクトルが実現できることを示しているが、必要な波長でのみ吸収(放射)が大きい都合な材料は自然界には希有である。そのため、現実には黒体に近い材料が光源として用いられてきた。また、熱に依存する以上、高速な制御は困難である。こうして、熱放射はスペクトル的にも時間的にも制御困難であると、長い間認識されてきた。

しかし、波長以下の人工微細構造で光を自在に制御するメタマテリアル、中でも極薄の金属/誘電体/金属(MIM)積層構造におけるプラズモン共鳴に基づくメタ表面を用いると、形状や寸法の選択により自在な吸収率(放射率)が実現できることが多くの研究で示され、今では、熱放射スペクトルはメタ表面の設計次第で自在に制御できるものと広く認識されるようになった。

プラズモン共鳴により、本来吸収の小さな金属にて特定の波長で吸収増強を起こせば、大きな放射率コントラストが任意の波長で得られ、偏光特性の制御すら可能である。我々はこれまでに、表面に垂直に刻み込んだMIM共振器のプラズモン共鳴により直線偏光した赤外光を放射する光源[1,2]、水平に配置したMIM共振器によるCO₂センサ用の2波長光源[3]を作製し、微細構造による熱放射スペクトル制御が今や実用レベルに達していることを示してきた。自在なスペクトル制御が可能となれば、残る課題は、それをどれだけ自在(高速)に時間的に制御できるかである。具体的には、温度一定のままで、材料物性(材料の相変化、半導体への電荷誘起)や形状を高速に変化させれば、熱放射が変調できる。

2013年に半導体への電荷誘起による熱放射制御が示され(わずか70、動特性は示さず)[4]、2014年には京大が200のフォトニック結晶で600kHzでの熱放射変調を実証した[5]。600kHzという実証値は驚異的だが、これは半導体の電気抵抗で制限されている。2013年にはMEMS構造による機械的変調で30kHzの熱放射制御が可能なが示唆された(実際の熱放射変調は示されていない)[6]。機械的駆動であれば現在の発振器の厚み振動を考えると、100MHz程度の超高速変調が可能と期待されるが、過去の例は固有

周波数の低い低剛性メンブレンを静電力で駆動するもので、高速化への適用は困難であった。

2. 研究の目的

本研究の目標を、メタ表面の共鳴の顕著なギャップ感性を利用して、1000という高温の熱放射を10MHzという高速で変調可能することに挑むこと、と設定した。具体的には、波長3~4μmの中赤外光を共鳴放射するメタ表面のギャップ部を圧電素子で20nmだけ高速強制駆動する。第1の目標はわずか数10nmの駆動で放射スペクトルを変化させるメタ表面を実現することである。数10nmという微小な変位は、将来的に100MHzの超高速振動が可能厚み振動圧電素子で駆動するために必須である。これを確認した上で、第2の目標として、周囲は常温に維持しつつメタ表面だけを高温に加熱できる、熱絶縁性と剛性を両立したSiN立体メンブレンという特異な構造を実現し、その先端面に、メタ表面を構成する金属パッチ配列と電熱ヒータを作り込むことを考えた。

3. 研究の方法

本研究の基本構造は、金属ストライプと金属膜で誘電体を挟み込んだ典型的なメタ表面構造であるが、ストライプ面と連続膜面に分割され、その距離Gが可変である[図1(a)]。最終的には金属には高融点のWを選択し、その表面を10nm程度の厚さのHfO₂で保護することを考えた。また、CO₂やその他の有機ガス(CH₄など)濃度計測に必要な3~4.5μmを想定して設計することとした。しかし、最初の原理確認には、金属としてはAu、保護膜としてはAl₂O₃を用いることとした。いずれも同じ工程で材料を変更するだけで1000にも耐えるW、HfO₂に対応できる。

重要なのは、共鳴が2面間のギャップに極めて敏感なことである。放射率のギャップ依存性と変調度を図1(b)、(c)に示す。具体的な波長として3.3μmと設定し、そこで完全吸収(完全黒体放射)を示す寸法として、系統的な数値計算により、T=10nm、L=530nm、P=950nmと設定した[寸法の定義は図1(a)参照]。この時、わずか20nmで92%もの強度変調が実現し、40nmも変位すれば無限に引き離れたのと等価である。微小な変位で大きな変調度が得られることがギャップ駆動メタ表面の特徴である。密着時に共鳴ON、離脱時に共鳴OFFとなる。

実際にわずか数10nmで放射率(吸収率)スペクトルが変化することを確認するため、図2の評価システムを構築した。図2(a)のユニットは、ストライプ面と連続膜面のギャップを圧電素子で駆動できるメタ表面を、精密調整された状態で一体整形できるよう設計した。図2(b)の組立システムにおいて、圧電

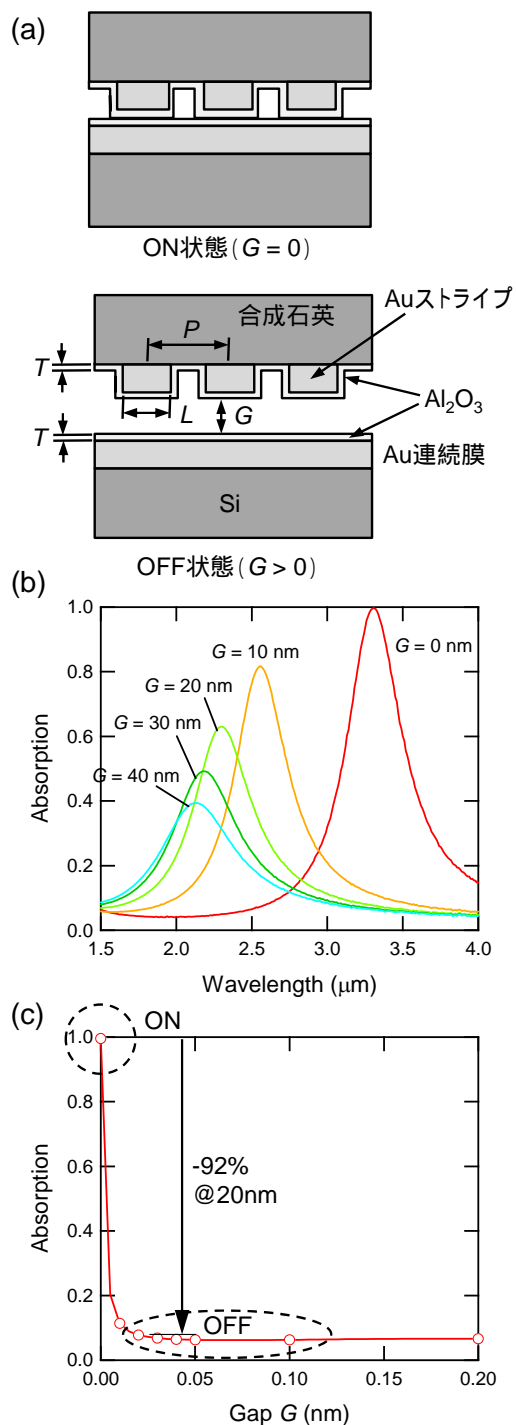


図1 ギャップ駆動メタ表面, (a) 構造, (b) 設計した構造の熱放射スペクトル, (c) 波長 $3.3 \mu\text{m}$ における放射率の距離 G 依存性

素子に高電圧を印加したまま2面を押し当て、そのまま接着固定することでストライプ面と連続膜面が平行に対向した状態を実現することがポイントである。完成したメタ表面ユニットはフーリエ変換赤外分光計 (FTIR) の赤外顕微鏡ユニットにそのまま取り付け可能で、反射測定により吸収率スペクトルを求める。キルヒホッフの法則によりこの吸収率スペクトルはそのまま放射率スペクトルに等しくなる。このシステムを組み替えると、そのまま実際の熱放射スペクトル

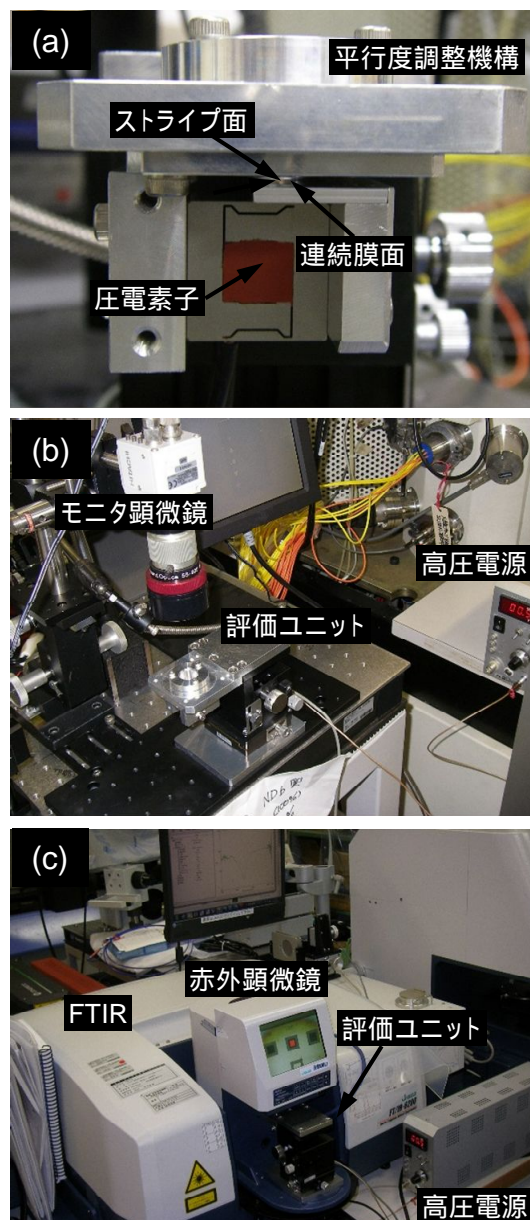


図2 ギャップ駆動メタ表面評価システム, (a) メタ表面ユニット, (b) 組立・調整システム, (c) 測定システム

も測定できる。数 $10 \mu\text{m}$ 角の微小領域からの熱放射スペクトルの測定技術は確立済みである[3]。

微細加工には当機構微細加工プラットフォームを利用し、当機構雇用の研究業務員 (笠谷岳士氏) を微細加工担当の研究協力者とした。担当者はこれまでのメタ表面開発に従事し、微細加工プラットフォームのほぼすべての設備に習熟している。クリーンルーム外の作業 (設計、組立、光学特性評価等) は研究代表者が担当した。

4. 研究成果

原理検証実験のためのストライプ面は、合成石英基板に電子線描画に必要な導電性を

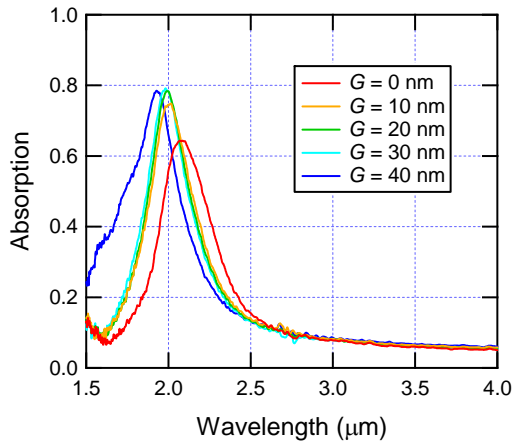


図3 ギャップ駆動メタ表面評価結果

持たせるためにITOを成膜した上に設計した $L=530\text{nm}$, $P=950\text{nm}$ のAuストライプ (Ti 3nm/Au 100nm) を電子線描画とリフトオフにより形成し、最後に原子層堆積 (ALD) 法により、 $T=10\text{nm}$ の Al_2O_3 を成膜した。また、連続膜側は接触面積が最小となるよう、Bosch加工にてメタ表面領域と外周の3点だけを突出させたSiにTi 3nm/Au 100nmをスパッタし、 $T=10\text{nm}$ の Al_2O_3 をALD成膜した。2面を押し付けると、外周の突出部で接触し、重要なメタ表面部には過度な荷重はかからない。この立体的な連続膜ユニットは研究提案時に構想した立体メンブレンの基本構造であり、これにSiNを化学気相法で成膜し、裏からKOHでSiをエッチングすれば、当初計画した通りの高剛性軽量構造が実現できる。

本研究の最初の需要ポイントは、最終的にわずか数10nmのギャップを形成させるメタ表面を、圧電素子に電圧を印加して押し付けた状態で組み立てることにより、両平面の平行度が機械的に調整されたメタ表面ユニットを実現することであった。しかし、初年度はこの点で問題に直面した。メタ表面ユニット全体の剛性不足のために、圧電素子の電圧を除去しても両面が分離しないなどの問題が生じた。最終的には図2(a)上部に見えるように、平行度調整機構を組み込み、組立後もある程度微調整できる構造に変更した。

こうして得られた吸収率 (放射率) スペクトルの例を図3に示す。実際のギャップ G を直接測定する手段はなく、 G は推測値である。わずか40nmの移動でスペクトルが変化することが確認できた。

しかしながら、正確に対応する寸法にて計算した図1(b)の結果と比べると2つの点で大きく異なる。一つは密着時 ($G=0$) の吸収 (放射) ピーク波長が大きく異なることである。3.3 μm の設計値に対して実際には2.1 μm 程度で、 $G>0$ の時と大きく異なる値であった。もう一つは $G=0$ にともない吸収率 (放射率) が単調に大きくなるはずであったのに、現実にはむしろある G から減少した点である。系統的なシミュレーションによりこれらの

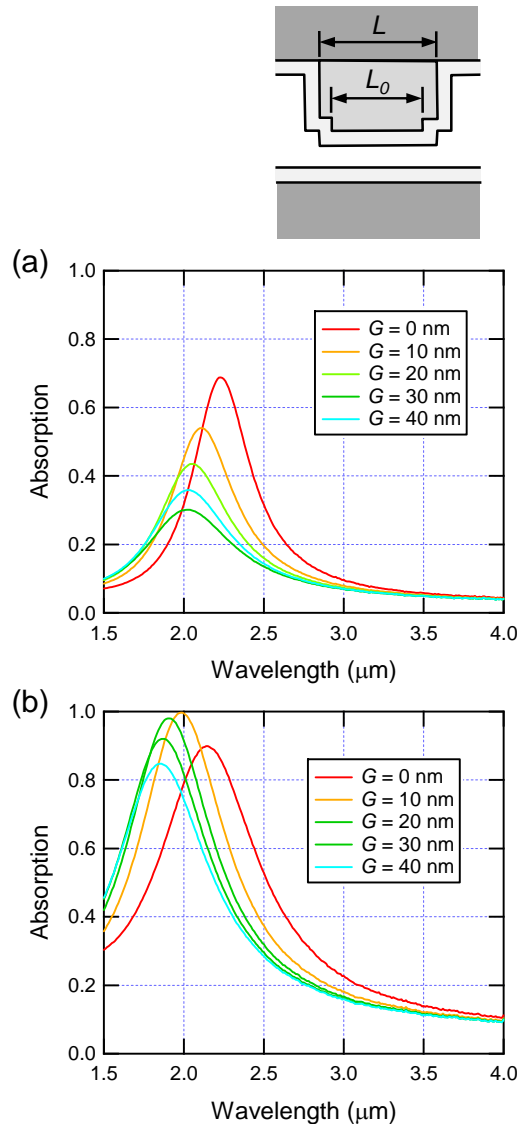


図4 数値計算による問題解析結果、(a) 部分接触によるスペクトル、(b) 吸収等を考慮したスペクトル

原因が推定できた。

図4(a)は挿入図に示したような、ストライプの先端が完全な平面ではなく、 L の幅の内的一部分だけが突出しており、そこだけが連続膜側と密着するとして計算である。具体的には $L_0=100\text{nm}$ 、突出部はAu 100nmの膜厚の内、20nmとした。これにより実験結果とピーク波長の位置がよく一致するようになった。 L_0 は300nm以下であれば計算結果はほぼ同様であった。幅 L のストライプの全面が一様に連続膜側と密着するのではなく、現実には角の部分は密着できず、中央の限られた部分だけが相手面と接触することにより、設計よりもピーク波長が短くなっているものと推定される。

しかしながら、これだけでは $G=0$ でピークは単調に上昇しており、この点では現実の実験結果とは一致しない。ピークの高さについては、 Al_2O_3 あるいはAuの吸収 (誘電率の虚部) が計算よりも大きいこと、 Al_2O_3 膜が設

計よりも薄いことを仮定すれば計算でも再現できることがわかった。図 4(b)は、 $T=5\text{nm}$ 、 Al_2O_3 が $k=0.4$ の吸収を持ち、Au の誘電率の虚部が設計に用いた値の 3 倍であると仮定し、さらに現実の測定系[図 2(c)]の赤外顕微鏡の入射角(23 度)を考慮した結果である。最も効いている要因は Al_2O_3 と Au の吸収で、現実にはこれほどの吸収の大きさは考えにくい、接触部が何らかの変質により大きな吸収を持ったと推定される。

特に部分密着によるピークの予想外のシフトにより、期待した $3.3\mu\text{m}$ での吸収が実現できず、92%もの変調度を実現できないという問題は生じたが、わずか $20\sim 40\text{nm}$ の極微小な変位により、メタ表面のスペクトルが実際に変化の様子は確認できた。これらの要因を設計に取り込めば、期待通りの吸収率(放射率)変化を示すギャップ駆動メタ表面は実現できる。

研究期間内に実現できたのは第 1 の目標に留まり、熱放射の高速変調までのすべての評価は終わることはできなかった。しかし、それを実現するための機構はほぼ確立した。また、必要な要因が十分に設計時に考慮できていれば、計算による吸収率(放射率)と実験結果が非常に良く対応することも確認できた。メタ表面による熱放射に関する研究はこの研究期間内にもますます盛んになり、本研究の重要性はより明瞭になったが、今なお同様の結果は報告されていない。今後も世界に先駆けた実証を目指す。

熱放射の高速変調技術が確立されれば、基礎から応用に渡る中赤外計測技術を一変させると期待される。熱放射光源の主な用途はガスセンサである。その原理は、光源を強度変調し、2 つの検出器で別々の波長の透過強度を同期計測し、その強度比から濃度を求めるものである。現在は光源の加熱・冷却が緩慢なため、変調周波数はわずか数 Hz、データ更新は数秒に 1 回である。しかし、高輝度な熱放射赤外光が MHz オーダの高速で変調できるとなれば、内燃機関のような高速燃焼現象の実時間ガス計測による最適制御も可能になる。また、 100ns の短パルス熱放射すら可能になるので、これまで大規模な非線形波長変換システムや、高価な量子カスケードレーザを用いるしかなかった中赤外計測が、安価で簡便な熱放射光源で実現可能になる。

参考文献

- [1] K. Ikeda, H. T. Miyazaki et al., Appl. Phys. Lett. 92, 021117 (2008).
- [2] H. T. Miyazaki et al., Appl. Phys. Lett. 92, 141114 (2008).
- [3] H. T. Miyazaki, T. Kasaya et al., Appl. Phys. Lett. 105, 121107 (2014).
- [4] S. Vassant et al., Appl. Phys. Lett. 102, 081125 (2013).
- [5] T. Inoue, M. De Zoysa, T. Asano, and S. Noda, Nature Mater. 13, 928 (2014).

[6] X. Liu and W. J. Padilla, Adv. Optical Mater. 1, 559 (2013).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

K. Wongpanya, T. Kasaya, H. T. Miyazaki, H. Oosato, Y. Sugimoto, and W. Pijitrojana, Mass-productive fabrication of a metal-insulator-metal plasmon waveguide with a linear taper for nanofocusing, Appl. Phys. B, 査読有, Vol. 122, No. 9, 2016, 238. DOI 10.1007/s00340-016-6515-8

宮崎英樹, 岩長祐伸, 光放射メタ表面の創製と応用, レーザー研究, 査読有, Vol. 44, No. 1, 2016, pp. 10-14.

H. T. Miyazaki, T. Kasaya, H. Oosato, Y. Sugimoto, B. Choi, M. Iwanaga, and K. Sakoda, Ultraviolet-nanoimprinted packaged metasurface thermal emitters for infrared CO_2 sensing, Sci. Technol. Adv. Mater., 査読有, Vol. 16, 2015, 035005. doi:10.1088/1468-6996/16/3/035005

[学会発表](計 7 件)

宮崎英樹, プラズモン共振器を用いたガスセンシング用赤外光源, 第 12 回プラズモニク化学シンポジウム, 2017 年 6 月 23 日(発表確定), 筑波大学東京キャンパス(東京都・文京区)

宮崎英樹, 金属メタ表面を用いた CO_2 ガスセンサー用中赤外光源, 日本真空学会 2017 年 1 月研究例会, 2017 年 1 月 18 日, 機械振興会館(東京都・港区)

宮崎英樹, ナノフォトニクスによる熱放射制御, 2016 年第 77 回秋季応用物理学会学術講演会, 2016 年 9 月 13 日~9 月 16 日, 朱鷺メッセ(新潟県・新潟市)

宮崎英樹, 光をあやつるナノ構造 - 光のアンテナ, フォトニック結晶, メタ表面赤外光源 -, 強光子場科学研究懇談会平成 27 年度第 2 回懇談会, 2016 年 4 月 28 日, 物質・材料研究機構(茨城県・つくば市)

H. T. Miyazaki, Photonics, Plasmonics & Metamaterials research in NIMS, The first NIMS-IMRE Workshop on Materials Science, 2015 年 10 月 21 日, 物質・材料研究機構(茨城県・つくば市)

宮崎英樹, UV ナノインプリント法で作製した CO₂ センサ用メタ表面熱放射赤外光源, 電気学会 E 部門総合研究会マイクロマシン・センサシステム研究会, 2015 年 7 月 3 日, 九州大学 (福岡県・福岡市)

H. T. Miyazaki, T. Kasaya, H. Oosato, Y. Sugimoto, B. Choi, M. Iwanaga, and K. Sakoda, UV-nanoimprinted metasurface thermal emitters for infrared CO₂ sensing, The 5th Korea-Japan Metamaterials Forum, 2015 年 6 月 29 日~7 月 1 日, ソウル市 (韓国)

〔図書〕(計 1 件)

H. T. Miyazaki, Wiley, Unconventional thermal emission from photonic crystals, in Micro- and Nanophotonic Technologies, P. Meyrueis, K. Sakoda, and M. Van de Voorde, Eds., 2017, 556 (pp. 51-63)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.nims.go.jp/units/apm/plasmonics/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宮崎 英樹 (MIYAZAKI, Hideki)

物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・グループリーダー

研究者番号: 10262114

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

笠谷 岳士 (KASAYA, Takeshi)