

平成21年6月2日現在

研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2007～2008  
 課題番号：19360096  
 研究課題名（和文） マイクロキャビティ選択波長擬似近接場光効果の発現と高密度光起電力発電の開発  
 研究課題名（英文） Impact of spectral control of near-field radiation around micro-cavities and its application into high-density thermophotovoltaic generation of electricity  
 研究代表者  
 花村 克悟（HANAMURA KATSUNORI）  
 東京工業大学・炭素循環エネルギー研究センター・教授  
 研究者番号：20172950

## 研究成果の概要：

鏡面研磨されたニッケル金属表面に製作された  $0.5\mu\text{m} \times 0.5\mu\text{m} \times 0.5\mu\text{m}$  のマイクロキャビティにより、遠方で計測される伝播成分について、このキャビティサイズに相当する空洞共振波長 ( $0.89\mu\text{m}$ ) 近傍において放射率は  $0.95$  と高く、また、カットオフ波長  $1\mu\text{m}$  より長い波長では、鏡面放射率に等しいおよそ  $0.2$  程度であることが示され、波長が制御できることが明らかとなった。さらに、このマイクロキャビティ内部からの放射を、マックスウェル方程式を解くことで、近接場成分がキャビティ外部まで達していることが明らかとなり、擬似的な近接場光として検出できること、さらに伝播成分と同様にこのキャビティにより波長制御が可能であることを示唆した。そこで、この擬似近接場光強度とその波長選択性を明らかにするために“真空型近接場光学顕微システム”装置を独自に開発した。一方、分子線エピタキシャル装置を用いて、波長  $1.8\mu\text{m}$  までの赤外線を変換できるアンドープ GaSb 電池を作製した。そして、黒体炉を用いた等強度半球入射光による発電効率測定装置を独自に開発し、伝播成分による発電効率を明確にできることを示した。さらに  $1000\text{K}$  に加熱された放射面と電池を真空容器内で数百ナノまで近づけることにより、伝播成分に比べて、開放電圧  $1.4$  倍、短絡電流  $4$  倍の出力が得られることを明らかにした。

## 交付額

(金額単位：円)

|        | 直接経費       | 間接経費      | 合計         |
|--------|------------|-----------|------------|
| 2007年度 | 7,100,000  | 2,130,000 | 9,230,000  |
| 2008年度 | 8,000,000  | 2,400,000 | 10,400,000 |
| 年度     |            |           |            |
| 年度     |            |           |            |
| 年度     |            |           |            |
| 総計     | 15,100,000 | 4,530,000 | 19,630,000 |

研究分野：熱工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：近接場光、キャビティ、エネルギー変換、波長選択、熱光起電力電池

### 1. 研究開始当初の背景

バンドギャップが小さい化合物半導体は、主に近赤外線を電力に変換できるので、例えば燃焼熱で赤熱されたセラミックスや金属などの固体から放射される熱ふく射を直接電気に変換できる。現在、欧州を中心に、暖炉など家庭用暖房機や給湯器の送風機電源供給として、また、ろうそく1本でも発電できることから災害時の携帯用電源としても試されている。その出力は、GaSb 電池において平均  $1\text{W}/\text{cm}^2$  であり、波長  $1.8\mu\text{m}$  以下に限定すれば、発電効率は34%と、高いポテンシャルを有している。しかしながら、放射されるふく射の波長制御や電池表面での反射や電極による遮光など、技術的な課題も多く、必ずしも、この電池の能力を最大限に利用したシステムではない。

放射するふく射の波長制御は、フォトリソグラフィ結晶に代表されるように多く見受けられるが、その多くが方向を変化させているものであり、かつ工学的に有用な広い面積に応用できるものはほとんどない。

一方、電池については、近接場光を利用できるように、電極も含めてフラットな表面を有する電池は、ほとんど入手不可能である。さらに、一般的に赤熱した表面から放射される赤外線の入射光は半球等強度入射であり、ランプを代用した平行光では、評価できない。

さらに、赤熱した表面を電池表面にナノオーダーまで近づける確実な方法は、これまで提案されていない。熱伝導率の小さなスペーサーを挟む方法などが試されているが、一瞬で電池温度が上昇し、実験不可能となる。

このように、近接場光効果を利用した新規なエネルギー変換の可能性が示唆されつつも、その実体はまったく明らかにされていないのが現状である。

### 2. 研究の目的

本研究は、金属表面に製作されたマイクロキャビティ近傍に生ずる擬似的近接場光強度とその波長選択性を、独自に開発した“真空型近接場顕微システム”を用いて明らかにするとともに、近接場効果を効果的に利用できる熱光起電力電池を同時に独自に製作し、それらの表面を近接場効果が生ずる範囲まで近づけることによって構成される、新規なエネルギー変換システムを構築し、例えば燃焼熱から電力への、いわば高温域で利用される主電源として、さらに比較的低温で作動する排熱発電として、高密度な発電システムを開発することを目的としている。

### 3. 研究の方法

鏡面研磨されたニッケルあるいはタングステン表面に  $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$  のキャビテ

ィを製作する。製作されたマイクロキャビティ資料を真空容器の中に設置し、所定の温度 ( $500^\circ\text{C} \sim 800^\circ\text{C}$ ) まで加熱する。定常状態に達したところで、新規に開発された円錐状の光ファイバー (円錐状先端半径  $400\text{nm}$ ) プロブを用いた改良型 SNOM (走査型近接場光学顕微鏡) により、試料からの高さを一定に保ち表面近傍を走査する。プロブ先端で近接場光が散乱され、その一部が光ファイバーを通して分光器へ導かれる。各波長の光強度を平滑面における結果と比較することで、マイクロキャビティの擬似近接場光の検出とその及ぶ範囲、さらに波長選択性を明らかにする。これは、本研究を通して開発された“真空型近接場顕微システム”である。

なお、これに先立ち、マイクロキャビティから放射される遠方場における伝播成分の波長特性を明らかにするために、真空容器内に、ニッケル鏡面基盤上に  $0.5\mu\text{m} \times 0.5\mu\text{m} \times 0.5\mu\text{m}$  のマイクロキャビティを施した表面を  $800^\circ\text{C}$  まで加熱し、サファイアガラス窓を通して分光器へ導き、その波長特性を明らかにする。

一方、分子線エピタキシャル法を用いて、近接場光発電に適した電池の開発を行う。ここでは波長  $1.8\mu\text{m}$  まで電力に変換できる GaSb 半導体を主体とする。Te をドーピングした n 型基板を購入し、その表面にアンドーピングの GaSb の p 型をエピタキシャル成長させる。その後、p 型表面に Au 電極を格子状に製作し、その高さも  $200\text{nm}$  と低くした。さらに、この Au 電極と p 型半導体との電気抵抗が最小となるように、 $300^\circ\text{C}$  の電気炉に数十秒間挿入し、アニーリングを行う。そして、黒体炉を用いて、まず、本研究で開発された、黒体炉から放射される半球等強度入射光 (プランクの法則に従う伝播成分) に対する発電効率を明らかにする。

次に、この製作された電池と、タングステン放射体 (本実験では平滑面) を真空容器内で、ナノオーダーまで近づけ、その近接場効果による発電密度を明らかにする。放射体表面は、その背面から CO<sub>2</sub> レーザーにより  $800^\circ\text{C}$  まで加熱され、さらにゴニオメーターにより、電池表面と平行に保たれる。さらに電池は、高精度マイクロメーターにより、数百ナノまで、放射体表面に近づけられる。そして、数十ミクロンから徐々に近づけることで、伝播成分のみの発電密度と、ナノオーダーに近づけ、近接場効果が発現したときの発電密度を比較する。

このように、放射体から電池まで一貫して、独自に開発することで、その各々の特性が明らかにできる。

### 4. 研究成果

まず、遠方場で計測される伝播成分につい

て、鏡面研磨されたニッケル基板上に周期的に製作された  $0.5\mu\text{m} \times 0.5\mu\text{m} \times 0.5\mu\text{m}$  のマイクロキャビティを  $800^\circ\text{C}$  まで加熱し、その淡色放射率を測定した。その結果、マイクロキャビティにおける放射率の最大値は、それを完全導体と仮定した空洞共進理論から得られる定在波の波長 ( $0.89\mu\text{m}$ ) にほぼ等しい波長 ( $0.86 \sim 0.88\mu\text{m}$ ) において、 $0.95$  と高い値を示した。また、開口サイズ  $0.5\mu\text{m} \times 0.5\mu\text{m}$  により得られるカットオフ波長  $1\mu\text{m}$  から、放射率は急激に減少し、波長  $1.7\mu\text{m}$  以上の長波長域では、平滑鏡面における放射率とほぼ等しくなることが示された。このようにマイクロキャビティの開口サイズにより、加熱された表面から放射されるふく射の波長を制御することが明らかとなった。

一方、このマイクロキャビティから放射されるふく射を、マクスウェルの電磁波方程式を解きくことで、その波長制御性について検討した。この場合、ニッケル金属の物性値を与え、電気双極子を金属内部の各グリッドノード点に配置し、双極子モーメントの方向と位相をランダムに与え有限差分法 (FDTD) を用いて計算した。その結果、キャビティ開口辺の長さを半波長とする電磁波、およびそれより波長の短い電磁波は、キャビティより遠方へ放射されることが再現できた。さらに、金属内部で各双極子の位相をランダムに与えたものの、遠方へ伝播するふく射のコヒーレント性が高いことがわかった。さらに、キャビティ壁表面に沿って、近接場成分 (エバネッセント波) が生じるものと思われたが、その強い電界強度はキャビティ内部を満たし、さらにその外部にまで達していることが明らかとなった。これは、キャビティ内部で共鳴している近接場成分が擬似的にキャビティの外部に達していることを示唆している。したがって、このような構造を用いることで、近接場光 (エバネッセント波) の波長制御が可能となることを示唆していることになる。

また、この近接場光 (エバネッセント波) を、光ファイバーを利用して検出できることを同じ計算コードを用いて明らかにした。このとき、ファイバープローブ先端の入射角度により、ファイバー内部での伝播光が平面波に近づくことで、信号強度が高くなることが示され、プローブ設計の指針が得られた。

この加熱されたマイクロキャビティ上の近接場光 (エバネッセント波) の検出および平滑面のそれとの比を明らかにするために、“真空型近接場顕微システム”を独自に開発した。通常、ピエゾ素子を用いてプローブを加振させ、対象物表面に近づくにつれて、その振幅が小さくなることを検出し、プローブと対象物の距離を一定に保つ。その振幅が変化する原因はよくわかっていないが、今回、

真空容器内でも振幅の変化が検出されたことから、粘性力の因子を省くことができることが明らかとなった。さらに、この振幅の変化を検出することで、 $1\text{Pa}$  程度の真空条件下において、マイクロキャビティの構造をトポ像として描くことに成功した。

一方、分子線エビタキシャル法を用いて、波長  $1.8\mu\text{m}$  までの赤外線を変換できる GaSb 電池を製作した。そのサイズは  $7\text{mm} \times 7\text{mm}$  である。この p-n 接合部の TEM 像から、その接合部に酸化膜の存在が明らかとなり、p 型成長の前に行う、n 型基板表面のエッチング処理に問題があることがわかった。しかしながら、黒体炉 ( $1000\text{K}$ ) を使った等強度半球入射光源を用いて、その発電効率を明らかにしたところ、波長  $1.8\mu\text{m}$  までの範囲に限ると、入射エネルギーに対する発電効率は  $4\%$ 、出力は  $18\text{mW}/\text{cm}^2$  であった。また、p 型層を  $120\text{nm}$  まで薄くすることで発電密度が上昇し、それ以上薄くなると p-n 接合部が製作できず、出力が低下することがわかった。

上記の作製された電池を用いた実験には至っていないが、市販の GaSb 電池を用いて近接場光 (エバネッセント波) を介した発電を行った。その結果、放射体温度  $800^\circ\text{C}$ 、電池温度  $20^\circ\text{C}$  として、 $2\text{mm} \times 8\text{mm}$  の電池表面と放射体表面を  $50\mu\text{m}$  以下に近づけた場合、形態係数はほぼ  $1$  に近く、これよりさらに  $2\mu\text{m}$  まで近づけるまで、開放電圧、短絡電流ともに変化しない。ただし、放射体への  $\text{CO}_2$  レーザー入力を一定に保ちつつ、 $3 \sim 4\mu\text{m}$  に近づけると、長波長域の熱ふく射において近接場効果が顕著となり、その温度が低下する。すなわち、熱輸送についても明確に近接場効果が顕著となることが明らかとなった。そして、 $2\mu\text{m}$  からさらに近づけると、開放電圧、短絡電流ともに増大し、形態係数が  $1$  となった伝播成分のみの場合に比べて、それぞれ、約  $1.4$  倍および約  $4$  倍となった。その後、出力が低下し、さらに近づけることで、出力ゼロとなった。この点を接触位置とすると、およそ  $500\text{nm}$  において最大の出力を得たことになる。平面度を確保することでさらに出力が増大するものと考えられる。

## 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)

① Daisuke Hirashima, Yuki Kameya and Katsunori Hanamura, Normal Spectral emittance of a nickel metal surface with rectangular microcavities, Heat Transfer-Asian Research, 38(3), 2009. (査読有)

② 平島大輔, 亀谷雄樹, 花村克悟, Ni 矩形マイクロキャビティの垂直単色放射率, 熱物性, Vol.22, pp.167-171, 2008. (査読有)

③ Katsunori Hanamura and Yuki Kameya, Spectral control of thermal radiation using rectangular micro-cavities on emitter surface for thermophotovoltaic generation of electricity, J. of Thermal Science and Technology, Vol.3, No.1, Special Issue on the 2007 ASME-JSME Thermal Engineering Conference and Summer Heat Transfer Conference, pp.33-44, 2008. (査読有)

[学会発表] (計 9 件)

① 花村克悟, 多孔質体内燃焼からナノ・マイクロレベル輸送によるエネルギー変換へ, 招待講演, 化学工学会第 40 回秋季大会, 9 月 24 日, 仙台, 2008.

② Yuji Taniguchi, Atsushi Nakano, Pachamuthu Jayavel and Katsunori Hanamura, Surface morphology of P-type undoped GaSb Epilayers for thermophotovoltaic generation of electricity through evanescent wave, Proc. of the 2<sup>nd</sup> International Forum on Heat Transfer, Sep. 17-19, Tokyo, pp.1-2, 2008.

③ Daisuke Hirashima and Katsunori Hanamura, Numerical simulation for probe design in evanescent wave measurement through near-field scanning optical microscope, Proc. of the 2<sup>nd</sup> International Forum on Heat Transfer, Sep. 17-19, Tokyo, pp.1-2, 2008.

④ 平島大輔, 花村克悟, Ni 矩形キャビティによる放射率波長制御, 日本機械学会関東支部第 14 回総会講演論文集, 3 月 15 日, 東京, pp.163-164, 2008.

⑤ R. Ito, K. Oryu, H. Shibuya and Manabu Ihara, Dye-sensitized solar cell using localized surface plasmon of Ag nanoparticles with different modulators, Technical digest of 17<sup>th</sup> International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC), Fukuoka, 6P-P5-05, December 6, 2007.

⑥ 6S. Terasawa, T. Inoue, A. Genseki and Manabu Ihara, Fabrication of b-FeSi<sub>2</sub> nanoparticle S/Si composite film by using

scanning annealing, Technical digest of 17<sup>th</sup> International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC), Fukuoka, 6P-P5-05, December 6, 2007.

⑦ 平島大輔, 花村克悟, エバネッセント波計測に用いるプローブ設計に関する数値計算, 第 28 回日本熱物性シンポジウム講演論文集, 10 月 24 日, 札幌, 157-159, 2007.

⑧ Tomoyuki Kumano and Katsunori Hanamura, Energy conversion from fossil fuel into spectral-controlled radiation for TPV by super-adiabatic combustion in porous quartz glass, Proc. of the 2007 ASME-JSME Thermal Engineering Summer Heat Transfer Conference, July 8-12, Vancouver, pp.1-5, 2007.

⑨ 平島大輔, 花村克悟, 周期的微細構造面から放射される熱ふく射の数値解析, 第 44 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, 5 月 25 日, 長崎, 715-716, 2007.

[産業財産権]

○取得状況 (計 1 件)

① 国内特許: 近接場光発電素子および近接場光発電装置  
出願人: 東京工業大学  
発明者: 花村克悟  
特開: 2008-300628  
公開日: 2008 年 12 月 11 日  
国内外の別: 国内

[その他]

① 花村克悟, 『真空型近接場顕微システム NFV-100』, 平成 21 年度予算申請カタログ, 日本分光(株)(JASCO), pp.11, 2008.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

花村 克悟 (HANAMURA KATSUNORI)  
東京工業大学・炭素循環エネルギー研究センター・教授  
研究者番号: 20172950

(2) 研究分担者

伊原 学 (IHARA MANABU)  
東京工業大学・炭素循環エネルギー研究センター・准教授  
研究者番号: 90270884

(3) 連携研究者

なし