

令和 4 年 6 月 20 日現在

機関番号：82670

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K14893

研究課題名(和文) 金属酸化物ナノ構造による光・熱環境の能動的制御

研究課題名(英文) Active control of thermal and light environment by metal oxide microstructures

研究代表者

磯田 和貴 (Isoda, Kazutaka)

地方独立行政法人東京都立産業技術研究センター・開発本部マテリアル応用技術部材料技術グループ・副主任研究員

研究者番号：80633031

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、能動的な制御が可能かつ表面の微細構造による光学特性の付与な太陽光利用材料の実現に向けた遷移金属酸化物による微細構造の実現を試みた。電気化学的、熱的な状態により光学特性が変化することが知られるタングステン、バナジウムの酸化物を対象にドライプロセス、ウェットプロセスそれぞれによる成膜を行い、ラマン分光分析による薄膜物性の解析を行った。均一な薄膜が得られたタングステン酸化物薄膜について電気化学セルとした場合の光学定数解析と過渡特性測定を行った。得られた光学定数を用いた酸化タングステンについて、太陽光制御をめざした構造的複屈折をオンオフ制御できる微細構造の設計を試みた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで、酸化タングステンや酸化バナジウムなどの遷移金属酸化物を用いたスマートウィンドウなどの技術については活発な研究開発が行われてきた。本研究では、このような遷移金属酸化物を新たに光学的な微細構造に適用することで光機能性を付与し、年間、更に日中や夜間を通した光・熱環境の能動的制御を目指した研究を行い、遷移金属酸化物の特性測定や厳密結合波解析による微細構造設計を通し、その可能性を検討した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we evaluate the switchable optical microstructure for seasonal and daily demands of sunlight interaction by employing transition metal oxide. We deposited tungsten oxide and vanadium oxide by wet- and dry-process. These two thin films are analyzed by using raman spectroscopy. We analyzed the optical and time constants of tungsten oxide electrochemical cell. The tungsten oxide switchable birefringence microstructure for control the sunlight transmission is numerically designed using rigorous coupled wave analysis.

研究分野：光工学

キーワード：太陽光反射 厳密結合波解析 酸化タングステン

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) エネルギー需要や地球環境への関心の高まりから、持続可能な私たちでエネルギーを創出する再生可能エネルギーの推進、エネルギー使用量自体を削減する省エネルギーやゼロ・エミッションの実現に向けた取組みが行われてきた。

(2) この取組みに対し、建築物の省エネルギーに関する太陽光利用の観点では、特に外壁においてはその光反射率を高めて建築物への熱流入を低減するような高反射率塗料などが大学、企業を問わず盛んに研究され、データセンター向けなど含めて一般にも使用されている。

(3) 我々はこれまでに、地表面からみた太陽位置の変化に伴う周期的な太陽光入射角の変化に着目し、金属表面にナノ・マイクロレベルの凹凸を形成し、太陽光に対する反射/吸収を季節的に変化させる手法を提案してきた。

(4) 実際には、建築物表面における1年間の周期的な光学特性の要請に加えて、日中や夜間など、1年間に比べると短期な時間スケールでの変化の要請も存在すると考えられる。このような特性を実現することで、年間を通してより使用エネルギー量を低減する効果的な建築物表面が得られる。しかしながら、金属表面の微細構造による光学特性はその構造自体により実現されていることから、このような多モードの光学特性変化に対して対応困難であることが課題であった。

(5) 日中/夜間などの状況に応じた光学特性変化を付与する技術として、電気化学的にその透過率が変化する酸化タングステンのようなエレクトロクロミック材料、温度に対して相変化し反射率が変化する酸化バナジウム系のサーモクロミック材料という、遷移金属酸化物を利用した能動的に光学特性の変調が可能なスマートウィンドウの研究開発が盛んに行われてきた。

(6) このような遷移金属酸化物による能動的な光学特性変化と、微細構造による材料表面の光学特性変化とを融合させることで、ワイヤグリッド偏光子などで知られる偏光や、構造的複屈折のような位相、またそれらを組み合わせた透過や反射といった構造による光学特性を有し、かつそれを電氣的、熱的にスイッチングできる、新規な太陽光の熱・光的利用材料の開発につながる。

(7) しかしながら、これまでこのような遷移金属酸化物を用いた微細構造を用いて太陽光を対象として能動的にその表面の光学特性を制御しようとした例はない。そのため、光学特性付与を目的とした加工が各遷移金属酸化物に及ぼす影響や、このような材料を用いた場合の最適な設計は明らかになっていない。

2. 研究の目的

そこで本研究では、このような太陽光利用向けの微細構造への遷移金属酸化物材料の適用を想定し、これに向けた遷移金属材料の光学特性、すなわち光学定数やそれに伴う透過・反射性変化およびその制御性を明らかにし、これら遷移金属材料を採用した場合の太陽光利用に向けて適した微細構造の構造を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 遷移金属酸化物の獲得

本研究ではまず、遷移金属酸化物薄膜の獲得を試みる。酸化タングステン系については比較的制御性の高い酸化タングステンナノ粒子インクによるスピンコート成膜により成膜する。酸化バナジウム系についてはそれぞれドライプロセス、ウェットプロセスの両手法により薄膜を形成し、成膜後の大気中アニールによる酸化、ないしは窒素雰囲気、真空下での還元により酸化バナジウム薄膜の獲得をめざす。ラマン分光などを用いた解析を通してその物質的な同定を試みる。

(2) 薄膜特性の測定と解析

また、分光エリプソメータ、分光光度計を用いた解析、測定により、それぞれの変化前後の光学定数や透過性、反射性を解析する。また、分光器による時間的な測定からそれぞれの材料に関する過渡特性の測定を試みる。

(3) 微細構造の設計

厳密結合波解析により、解析した光学定数を用いて、遷移金属酸化物による微細構造の設計を試みる。太陽光の波長を対象に、構造の単位形状や繰返し周期などを変化させた場合の光学特性について解析する。

4. 研究成果

(1) 遷移金属酸化物の獲得

バナジウムは酸化状態ごとに様々な形態を示すことが知られている。室温付近で光学特性が変化するのバナジウム2酸化物(VO_2)である。そこで、この VO_2 の獲得を目標に実験を試みた。バナジウムターゲットを用いたイオンビームスパッタリングにより石英基板への成膜を行った。ラマン分光分析の結果から、アルゴン-酸素混合雰囲気中でスパッタリングしたバナジウム酸化物薄膜を大気中でアニールし、その後真空雰囲気下で再度アニールすることで、酸化バナジウム

薄膜の形成を試みた。それぞれのラマン分光分析結果を図1に示す。先行文献との比較から、図1(a)~(c)で示した薄膜はそれぞれ V_4O_9 , V_2O_5 , $VO_2(B)$ であることが示唆された。

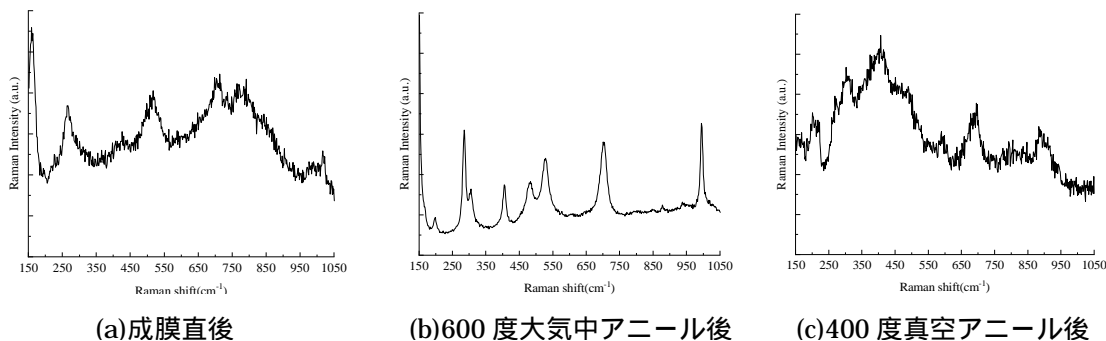


図1 スパッタリングとアニールによる酸化バナジウム薄膜の変化

一方ウェットプロセスにおいては、バナジウム微粒子(粒径 $40\mu\text{m}$)を過酸化水素水化と反応させ、石英基板表面への滴下後、真空雰囲気下でのアニールにより、図2に示すようなラマン分析ピークを有する酸化バナジウム薄膜が得られた。前述と同様の比較から、この薄膜は室温での相転移を示すとされる $VO_2(M)$ であることが示唆された。しかしながら、バナジウム微粒子の粒径が $40\mu\text{m}$ 前後と比較的大きく、この $VO_2(M)$ 薄膜は不均一な薄膜であった。均一かつ平坦な薄膜が求められるナノ~マイクロオーダーの微細構造として加工するには、成膜手法の更なる最適化が必要であることが示された。

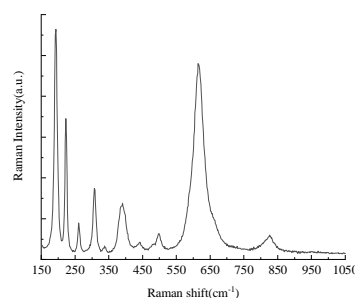


図2 ウェットプロセスでの酸化バナジウム薄膜

本研究で予定している遷移金属酸化物のナノ構造に向けた研究をさらに進めるため、既に所望のエレクトロクロミズムを示すタングステン化合物(WO_x)ナノインク(Sigma-aldrich)を用いたウェットプロセスによる薄膜形成を行った。回転速度を制御し、光学定数、特に消衰係数を解析するため異なる厚みの薄膜とした。

(2) 薄膜特性の測定と解析

石英基板上に成膜した WO_x 薄膜に対して、イオン伝導体(Nafion, Sigma-aldrich)を用いて電気化学セルとし、分光エリプソメータ(J.A. Woollam Inc.)により発色前後の光学定数変化を解析した。また、分光器(Avantes B.V.)により発色前後の時間的な透過率変化を測定した。結果を図3および図4に示す。屈折率変化 n は波長 720nm において最大で 0.4 となった。また、透過率変化の時定数は変化量 63% で 1 秒、 90% で 2 秒であった。例えば日中/夜間での光学特性への要請変化に対応するという本研究の用途を考慮すると、実用上の時定数として問題ないと考えられる。

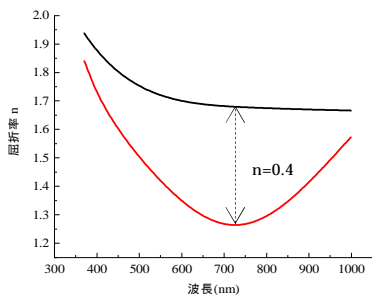


図3 WO_x 薄膜の屈折率変化
黒:発色前, 赤:発色後

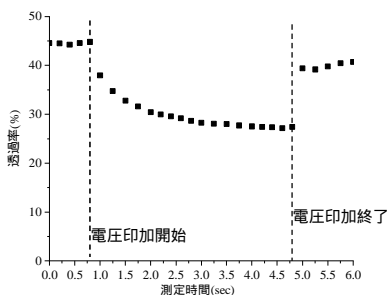


図4 WO_x 薄膜の時定数測定結果

(3) 微細構造の設計

WO_x の屈折率変化に着目し、構造的複屈折のオンオフによる位相差量制御を目的とした微細構造の厳密結合波解析による数値計算を行った。基板法線からの入射に対し、構造はラインアンドスペースと呼ばれる1次元周期構造とし、単位構造の周期とライン部分の比(デューティ比)に対する、オンオフ時の位相差量変化を解析した。構造高さは入射光の1波長分を単位厚みとした。単位厚みに対し、デューティ比 0.4 のとき、位相差量のオンオフ差は最大となり、 51.8° であった。この構造を約 3.5 波長分の厚みとした場合に、位相差量のオンオフ差は $1/2$ 波長分となる。これは、直交する偏光子中に挿入することで、光透過のオンオフを制御できることに相当し、遷移金属材料による微細構造を用いた、新たな太陽光利用材料の開発可能性が示された。

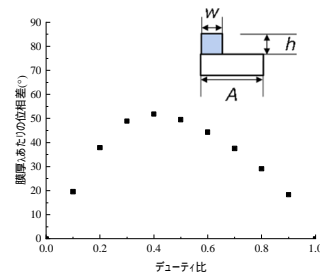


図4 WO_x 微細構造の電圧印加有無に対する位相差解析結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------