

令和 6 年 6 月 4 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04894

研究課題名（和文）近距離秩序を有する自己組織化ナノ構造を用いた大面積メタサーフェスの実現

研究課題名（英文）Self-aligned amorphous nanostructure patterns for large-area metasurface

研究代表者

清水 信（Shimizu, Makoto）

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：60706836

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）：本研究では、周期の異なる配列構造の吸収特性を解析し、構造欠陥が吸収特性に与える影響を評価した。周期性の高い正方形格子構造とハニカム構造では欠陥の導入に比例して吸収率が低下する一方、周期性はないが短距離秩序のある六角配置ハニカム構造では吸収率の低下が僅かであることが示された。また、平面波展開法で計算したバンド構造を基にした光子状態密度図から、アモルファス構造は短距離秩序を有する六角配置ハニカム構造と似た特性を示し、バンドギャップ的な状態密度の減少が多くの周波数領域で見られる、これが欠陥に対する吸収ピーク低下を抑制する要因となっていることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来の人工構造表面（メタサーフェス）による熱輻射スペクトル制御技術では構造の周期性、均一性が制御特性に大きく関与するため、大面積作製プロセスにおいて発生する構造欠陥によって熱輻射スペクトル制御性能が大きく低下してしまうという課題があった。本研究では短距離秩序のみ非周期構造においてフォトリックバンドギャップ的な光子状態密度の変調が生じることを示し、これに基づく吸収ピークは構造欠陥の影響を受けにくいことを示した。この成果によって、スピノーダル分解に基づくアモルファス配列ナノ構造を用いた大面積メタサーフェスの実現が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we analyzed the absorption properties of three different array structures with different periods and evaluated the effect of defects on the absorption properties. It was shown that the absorption rate decreases in proportion to the introduction of defects in the square lattice and honeycomb structures, while the absorption rate decreases only slightly in the hexagonal arrangement honeycomb structure. The photon density of states diagram based on the band structure calculated by the plane wave expansion method shows that the amorphous structure exhibits similar characteristics to the hexagonal honeycomb structure with short-range order, and that the band gap-like density of states decreases in many frequency regions, which is a factor suppressing the absorption peak decrease with respect to defects.

研究分野：エネルギー変換工学分野

キーワード：太陽光 熱ふく射 アモルファス スピノーダル分解 フォトリック構造 アンダーソン局在 ナノ構造

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。

1. 研究開始当初の背景

これまでの熱工学や機械工学では熱輻射を「光」ではなく「熱」として扱う学問体系を構築してきた。これに対し近年、熱輻射のスペクトル特性や放射角度特性の制御といった、「光」としての特性を制御することによる熱輸送制御技術の研究が盛んに行われている。これまでに人工的な光学機能表面(メタサーフェス)を用いることで特異な光学特性が得られることが報告されており、この特性は熱輻射(光)の波長と同程度の周期的ナノ構造における共振現象や表面プラズモン共鳴に起因するものが主である。したがって熱放射スペクトル特性は構造の形状や配列によって制御が可能であるが、逆に言うと構造加工精度の影響を受けやすく図1に示されるように構造欠陥の存在によって制御特性は大きく低下する。

これらの熱輻射スペクトル制御技術に関する研究は国内外問わず現在も盛んに研究が行われており、例えば熱光起電力発電用エミッタや、集光型太陽熱発電における太陽光選択吸収材料への応用を中心に研究が進展している。また、申請者らは電子デバイスの冷却への応用についても研究を行っており、従来の伝熱の一形態としての輻射伝熱制御に留まらない、新たな熱の高効率利用(輸送)技術として、研究が拡大しつつある。微細構造を用いた制御技術は多層膜による波長選択吸収特性にはない熱安定性とスペクトル制御自由度の実現が可能であるが、実用化面においては大面積化が大きな課題であった。

ランダムな非周期構造が形成された場合、一般に吸収率は幅広い波長域で上昇する。これは表面における多重散乱および空気材料界面における実効屈折率の段階的变化による。一方で図2に示すように非周期構造であっても近距離秩序を持つアモルファス配列構造の場合にはランダム非周期構造とは異なり、光子のアンダーソン局在効果による特異な光学特性が得られることが知られている^[1, 2]。例えば非周期構造にも関わらずフォトニックバンドギャップが現れることや^[3]、フォトニックバンド構造の変調による吸収特性変化も報告されている^[4]。これら短距離秩序による光学特性制御技術は”Disordered photonics”という研究分野で比較的早く(1980年代)から数値解析を中心に研究報告がなされている研究分野である^[1]。非周期(短距離秩序)構造であっても特異な光学特性が得られるが、ほとんどは学術的視点に立った研究であり、応用的視点からの研究は知る限り為されていない。これはアモルファス配列構造を簡便に作製可能な技術がなかったことも大きな原因と考えられる。

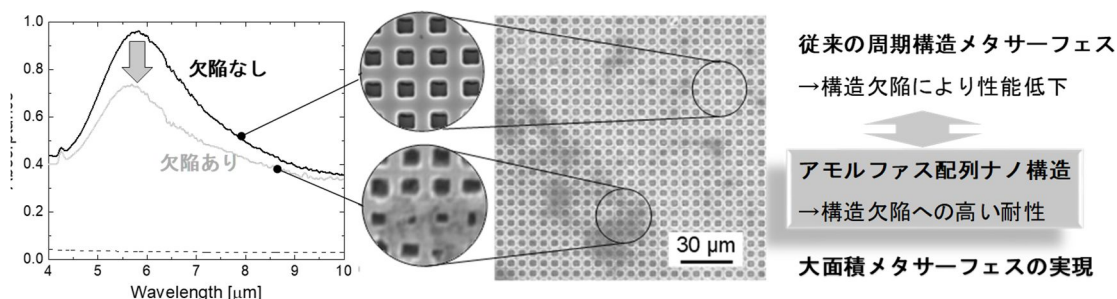
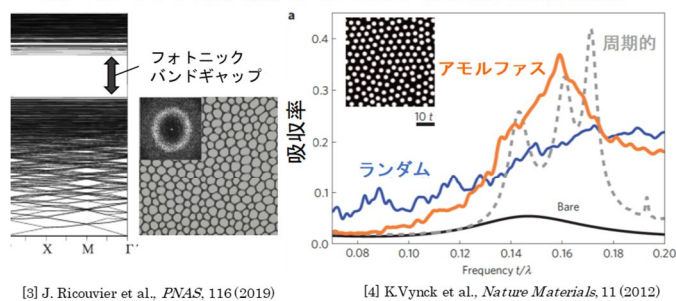


図1 本研究の概要

<アモルファス配列構造による光学特性制御先行研究>



入射光子のアンダーソン局在効果により非周期構造(短距離秩序)でもフォトニックバンドギャップ形成

バンド端吸収等に起因する波長選択吸収(放射)特性を持つメタサーフェスとして機能

完全な周期性・均一性を必要としないため構造欠陥の影響小

- 構造パラメータと光学特性制御機能との関連が未解明な部分多い
- 応用可能なアモルファス構造作製方法がない

図2 アモルファス配列構造による光学特性制御技術の先行研究および特徴・課題

さらにアモルファス配列構造の構造パラメータ(構造密度、構造深さ、構造サイズ分散など)と吸収スペクトル特性との間にはまだ不明な点も多くあり、加えてこの技術を応用するためにはアモルファス配列ナノ構造の形成方法が大きな課題であった。

これに対し我々はニッケル基超合金におけるスピノーダル分解に基づく自己組織化現象を用いることでアモルファス配列ナノ構造を作製できることを見出し、波長選択吸収特性が得られることを明らかにした。構造は熱処理条件制御とウェットエッチングプロセスによって作製できるため原理的には大面積かつ曲面といった複雑表面や円筒内壁といった構造体内部へも構造作製も可能となる。

2. 研究の目的

本研究ではスピノーダル分解に基づく自己組織化現象を用いて構造深さや構造密度や構造サイズ分散などの異なるアモルファス配列ナノ構造を作製し、作製された配列構造に基づいてフォトニックバンド構造計算を行った。これにより構造パラメータが及ぼす吸収特性への影響を明らかにし、アモルファス配列ナノ構造を用いた吸収スペクトル制御技術の確立を目指した。また、応用展開を考え可視光から中赤外光における吸収スペクトル特性制御を可能とする大面積メタ表面作製プロセス確立も行った。

3. 研究の方法

構造パラメータがスペクトル制御特性へ与える影響の解明

アモルファス配列構造における吸収スペクトル制御特性は構造の短距離秩序に起因するフォトニックバンド構造によって決まると考えられる。したがってバンド計算を用いてスペクトル制御特性への構造パラメータ(深さ、サイズ、秩序性、構造密度など)の影響を解析する。また、スピノーダル分解は熱処理条件、および合金の組成比の影響を受けるため、それらを変化させることで異なる構造パラメータを有するアモルファス配列構造を実現することが可能であり、これら解析と実験によって影響を明らかにする。

4. 研究成果

厳密結合波解析(RCWA)法を用いて周期の異なる3種類の配列構造に対する吸収特性をシミュレーションによって解析した。その際、各配列構造において異なる割合で欠陥(円孔抜け)を導入し、波長選択吸収特性に与える欠陥の影響を評価した。図3に示す通り、正方格子構造と八ニカム構造では欠陥の導入量に比例して吸収率が低下しているのに対し、六角配置八ニカム構造では欠陥が入ると僅かに吸収率は低下しているものの、他の周期性が高い配列構造を比較して明らかに低下量が少ないことがわかった。

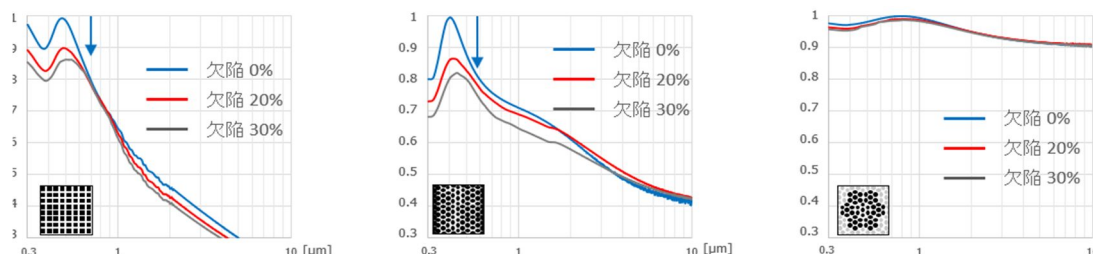


図3 配列構造の違いによる吸収特性への影響と欠陥に対する変化

(左) 正方格子配列、(中央) 八ニカム配列、(右) 六角配置八ニカム(非周期構造)

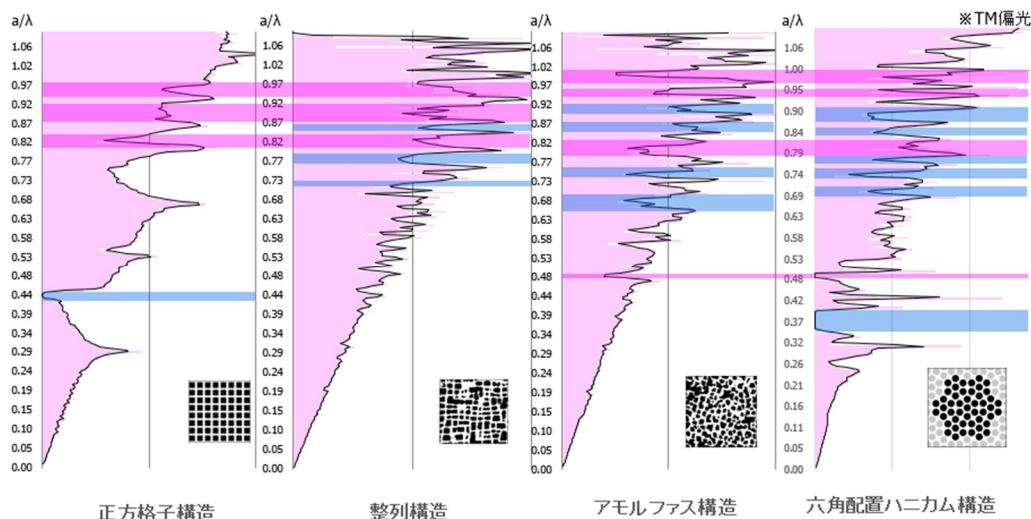


図4 各構造における光子状態密度分布

また平面波展開法で計算したバンド構造から作製した正方格子構造、整列構造、アモルファス構造、六角配置ハニカム構造の状態密度図を示す。また通常バンドギャップはエネルギーが全く存在しない範囲のことを指すが、配列が綺麗に整列していない構造ではほとんどの場合バンドギャップは消えてしまうため、本研究では便宜上周辺よりもエネルギー固有値の密度が低い部分をバンドギャップと呼ぶこととする。図4中の青帯・赤帯は短波長域における比較的是っきりと確認できるバンドギャップを示しており、特に赤帯はほぼ同じ位置にほぼ同じ大きさで存在するバンドギャップを示している。正方格子構造では0.6付近に強いバンドギャップが見えているが、整列構造(スピノーダル分解後に時効熱処理により配列周期性が向上した試料)およびアモルファス構造ではそれは見えなくなっている。また整列構造と比較してアモルファス構造ではバンドギャップの幅が広がっており、高エネルギー部分において、六角配置ハニカム構造の状態密度図に似ていることがわかる。

以上示したようにアモルファス構造試料は吸収ピークを示す周波数領域において状態密度における構造起因の変調が長距離秩序の高い配列構造とは異なっており、多くの周波数領域でバンドギャップ的な状態密度の減少が生じている。また、この特性は短距離秩序を有する六角配置ハニカム構造と比較的近い構造を示していることから、この光子状態密度の違いが欠陥に対する吸収ピーク低下を抑制する要因となっていると結論付けられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

| | |
|---|-----------------------------|
| 1. 著者名 Liu Zhen, Shimizu Makoto, Yugami Hiroo | 4. 巻 30 |
| 2. 論文標題 Emission bandwidth control on a two-dimensional superlattice microcavity array | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Optics Express | 6. 最初と最後の頁 13839 ~ 13839 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.455722 | 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 Makoto Shimizu, Hiroo Yugami | 4. 巻 2023 |
| 2. 論文標題 Full spectrum utilization of sunlight using thermophotovoltaics | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 JSAP Review | 6. 最初と最後の頁 230415-1 ~ 5 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11470/jsaprev.230415 | 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 清水信、湯上浩雄 | 4. 巻 52 |
| 2. 論文標題 熱輻射スペクトル制御に基づく熱マネジメント技術の応用とその発展 | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 光学 | 6. 最初と最後の頁 1-8 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 無 |
| 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 清水信 | 4. 巻 62 |
| 2. 論文標題 ふく射伝熱に基づく熱の電力変換 | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 伝熱 | 6. 最初と最後の頁 43 ~ 48 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 無 |
| 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5件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 Makoto Shimizu, Zhen Liu, Hiroo Yugami |
| 2. 発表標題 Spectral Shaping of Thermal Radiation with Imperfect Periodic Array Microstructure and Application Technology for Large Scale Metamaterials |
| 3. 学会等名 Frontiers in Optics + Laser Science (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 清水信、阿部俊郎、湯上浩雄 |
| 2. 発表標題 透明導電酸化物を用いた太陽光選択吸収材料の 作動環境下における性能評価 |
| 3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 清水信, 湯上浩雄 |
| 2. 発表標題 金属 誘電体積層構造を用いた高温フォトニクス技術 |
| 3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Zhen Liu, Makoto Shimizu, Hiroo Yugami |
| 2. 発表標題 Hybrid Resonance Mode Based Narrowband Emission in 2D Superlattice Photonic Microcavity |
| 3. 学会等名 13th World Conference on Thermophotovoltaic Generation of Electricity (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Zhen Liu, Makoto Shimizu, Hiroo Yugami |
| 2. 発表標題 Narrowband Thermal Radiation from Superlattice Microcavity Consist of a Refractory Metal |
| 3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2022年 |

〔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 |
|---------|---------|
|---------|---------|