

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760047

研究課題名（和文） 広帯域・広角度プラズモニック集光体を用いた薄膜系光電変換システムの創出

研究課題名（英文） Invention of thin photovoltaic systems incorporating wide-band, wide-angle plasmonic light collectors

研究代表者

岩長 祐伸（IWANAGA MASANOBU）

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・主任研究員

研究者番号：20361066

研究成果の概要（和文）：プラズモニック構造をその固有電磁状態から詳細に研究し、多くの構造に対してその特性を明らかにした。プラズモニック集光体を組み込んだ薄膜系光電変換システムにおいて、可視光から近赤外にわたる広帯域かつ120度以上の広角度で80%程度の光吸収を示すことを現実的かつ高精度数値計算から見出した。

研究成果の概要（英文）：Plasmonic structures have been investigated in detail from the electromagnetic eigen modes. The characteristics in many plasmonic structures have been clarified. It was shown based on the high-precision, realistic numerical computations that visible-to-near-infrared wide-band, more-than-120-degrees wide-angle light absorption of high efficiency up to 80% takes place in thin photovoltaic systems incorporating plasmonic light collectors.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用光学・量子光工学

キーワード：プラズモニック光集光体、光電変換素子

1. 研究開始当初の背景

（1）1990年代のナノテクブームに乗って、金属ナノ粒子におけるプラズモン共鳴の研究は世界中で盛んに行われてきた。そこから派生的に金属ナノ粒子を色素系太陽電池や半導体と組み合わせる実験研究が多数行われてきたが、十分な増強効果を示唆する報告例は数少なく、増強効果がいまだに模索されている段階にある。その原因として、金属ナノ粒子のプラズモニック共鳴状態、

つまり Mie 共鳴状態（金属内部の励振モード）が強い電気双極子輻射を通じて 10 fs 程度の超高速で外部へと輻射されるために、金属内の励起エネルギーが物質の電子状態へ効果的にトランスファーする光・電子結合系を構成することができなかったことが挙げられる。これまでは金属ナノ粒子の大きな輻射損失を過小評価して研究が行われてきたために、期待した結果はほとんど得られてない現状にあった。

(2) 近年、太陽電池に代表される光電変換素子の高効率化と生産コストの低減という要請を満たすことが課題となってきた。その解決策の一つとして、プラズモニック構造による光電変換素子の高効率化が世界的にも注目を集めている。グローバルな研究競争のなかで、短期間にこの課題で成果を挙げることが求められている。

2. 研究の目的

環境技術への国際的な需要が高まってきていることをうけて、光エネルギー・電子変換素子の高効率化と生産コストの低減という、一見すると相矛盾する要請が喫緊の課題となってきた。本研究においては系統的な実験的研究、つまり、数値的な構造探索・設計を実施し、その結果にもとづいて試料作製、性能実証につなげていく一貫性のある研究を実施し、新規な薄膜系光学変換素子の創出を目指す。具体的な素子の構成として、プラズモニック構造と pn 接合薄膜の結合系からなる光電変換素子の高効率化を目指すことにする。

3. 研究の方法

(1) これまで研究代表者が見出してきたプラズモニック集光体は 1 次元系であったので、偏光依存性のない 2 次元プラズモニック周期構造の研究から着手した。

まず評価すべき量は光吸収量であるから、プラズモニック構造の光学応答、つまり反射率、透過率、回折効率を算出して入射光強度からそれらを引くことにより、光吸収量を定量的に求めた。したがって、光学応答の計算が最初の課題であった。この種の数値的な評価にはマクスウェル方程式をフーリエ変換して波数表示に変え、数値的に高精度に解く方法 (Fourier Modal Method, FMM) が最も信頼できる。

研究代表者自身が開発したこの方法のコードをスーパーコンピュータ上で運用することで数値計算を実行した。なお、プラズモニック構造の高精度計算には、100 GB 以上の大きなメモリが必要であり、市販のパーソナルコンピュータ上では事実上実行できない。

なお、計算実行時には現実的な計算を行うため、用いる材料の測定値を文献から採取して用いた。半導体、金属、透明誘電体が薄膜系光電変換素子の構成物質として含まれるが、いずれも文献値の誘電率を用いたマクスウェル方程式を解いた。

(2) プラズモニック構造の固有電磁状態が電場増強効果を理解する最も基本的な情報であるから、その解明にも注力した。

固有電磁状態の解明にはモードの波数・エネルギー分散を明らかにすることと固有モードの電磁場状態を可視化することを併せて行う必要がある。前者は上記 FMM によって得られる。後者は有限要素法をもとにマクスウェル方程式を空間座標で解く商用ソフトウェア (COMSOL Multiphysics) を使用した。現状ではこのソフトウェアがプラズモニック構造に対して最も実績があり、信頼できるからである。

(3) 上記研究から得られた知見をもとに新規なプラズモニック光電変換素子の設計、作製を行っていく方針である。

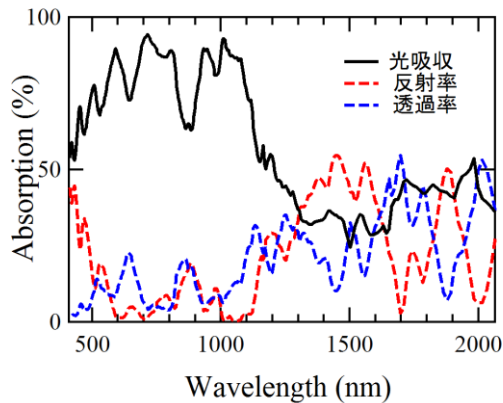
基本的な構成として、光電変換部は pn 接合による方法が工程の簡素化と将来的な生産コストの低減の観点から有望であると考え、採用する。

4. 研究成果

(1) プラズモン共鳴の光電変換系への応用を目的として、初年度ではとくに局在プラズモン共鳴の新規探索、共鳴状態の解明を中心に研究を実施した。

光の波長よりも小さい空間スケール (サブ波長スケール) においてプラズモン共鳴を制御することにより、光電変換系サイズの極小化が可能になると考えられるから、金属のサブ波長構造におけるプラズモン共鳴を対象として、透過率・反射率などの光学応答の実験的・数値計算的評価、共鳴状態の数値計算による可視化を行い、共鳴状態の詳細を明らかにした。

具体的な構造としては、相補的な 2 つの層を近接させた積層構造を作製する相補的積層構造を集中的に検討し、プラズモン場で結合させて、回転磁場型、回転電場型の新しい局在プラズモン共鳴が発現することを見いだした。これらはサブ波長スケールにおける新たなプラズモン状態であり、極小空間において共鳴電磁場分布を操作できることを示す結果である。この相補的積層構造は光の偏光状態を選択的に操作することができ、サブ波長の厚さで数センチメートル厚さのプリズムと同等以上の性能を有することも明らかにした。また、円偏光の操作もサブ波長構造の複合的積層構造によって可能であることを示した。このように極小サイズの構造でありながら、既存の光学素子に遜色ない光操作性を有する構造を見いだしたことは今後のサブ波長光電変換構造の具体的設計、作製を肯定的に支持する結果を得た。



図：薄膜系半導体状に形成された2次元周期プラズモニック構造の光吸収スペクトル（黒実線）と反射（赤破線）・透過（青破線）スペクトル。

(2) 次年度（かつ最終年度）はプラズモニック構造における固有状態を明らかにすることをさらに推し進めて基礎的な知見の充実を図ったことに加えて、プラズモニック集光体を有する光電変換素子の数値的な設計を重点的に実施した。

実用を視野に入れて、加工における工程の簡素化と稀少元素を使わないなどのコスト面、技術面での要請を満たすように設計を行うことは単純な構造探索アルゴリズムだけではなしえないことである。以上の総合的な考察のうえに設計を実施した。

これらの設計は実際の光電変換素子の作製時に直接生かされるものである。実際の設計においては、電極としての機能を同時に持たせる事が可能な構造のなかから、可視光から近赤外光域にわたる広い波長域において集光効果を得るための構造を見出した。

図は数値的に見出した構造の一例から得られた光吸収スペクトル（実線）と光学スペクトル（破線）である。この構造は広い波長範囲（500～1100 nm）かつ広い入射角度範囲（±60度以上の範囲）で80%程度の吸収率を示している。この2次元プラズモニック構造は入射光の偏光依存性が生じないように考慮されたものである。

詳細構造はSi基板の上に酸化物膜（SiO₂）薄膜、厚さ250 nmがあり、さらにその上に厚さ300 nmのpn接合半導体（Si）がある薄膜系をもとにしている。薄膜Siの上にプラズモニック構造を直接導入することにし、周期長3000 nmの正方格子状構造を金属（アルミニウム）で構成する。金属の厚さはこの例では200 nmとした。単位胞内に1セットを4個1組とする小さい金属の正方形の集まりが4セットあり、4セットのうち2セットずつが同じ構造とした。同じセットは互いに隣接し、互いに並ぶ構造をとっている。これは偏

光依存性を消すためである。正方形の大きさは、一種類は525 nm四方の正方形、もう一種類は350 nm四方の正方形である。4個1組の正方形は互いに一辺の15%の長さ間隔で互いに配置して距離を保つようにし、各セットは単位胞を等4分割したそれぞれの中心とセットの中心を一致するように配置した。

図の光吸収を示すプラズモニック構造はこれまでの報告例にあるプラズモニック集光体と比較して、広帯域・広角度で機能するより良い構造であり、本研究における一つ明示的な成果である。

光吸収率のようなマクロな量に加えて、典型的なプラズモニック結晶においてミクロな電磁場増強効果も詳細な第一原理解析を実施した。

以上の結果を基に光電変換素子の作製に値する構造設計はでき、素子作製の工程に取りかかる段階に到達した。今後、作製した素子の光電変換効率の性能評価実証まで進めていく予定である。

(3) 以上の研究成果を発信することにも努力し、原著論文5報（査読有）、日本語解説4報、著書2冊（分担執筆）を公刊した。学会などにおいても計15件、うち招待講演3件の成果発表も行った。特許出願は1件であった。

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9件）

- ① M. Iwanaga, N. Ikeda, and Y. Sugimoto, "Enhancement of local electromagnetic fields in plasmonic crystals of coaxial metallic nanostructures," *Phys. Rev. B* Vol. 85, 045427 (2012) 査読有
- ② 岩長祐伸、プラズモニック材料—メタマテリアルを用いた極小光学素子、工業材料、60巻、No. 1, p. 70-71 (2012) 査読無
- ③ 岩長祐伸、宮崎英樹、杉本喜正、迫田和彰、光メタマテリアル、オプトロニクス、30巻、No. 12, 59-62 (2011) 査読無
- ④ 岩長祐伸、積層プラズモニック結晶における光機能性発現、東北大学サイバーサイエンスセンター・大規模科学計算システム広報、44巻、No. 2, 49-56 (2011) 査読有
- ⑤ M. Iwanaga, "In-plane plasmonic modes of negative group velocity in perforated waveguides," *Opt. Lett.* Vol. 36, 2504-2506 (2011) 査読有
- ⑥ M. Iwanaga, "A new class of plasmonic crystals: the eigen modes, field enhancements, and applications," *Proc.*

SPIE Vol. 7946, 79461I (2011) 査読有

⑦ M. Iwanaga, “Electromagnetic eigenmodes in a stacked complementary plasmonic crystal slab,” Phys. Rev. B Vol. 82, 155402 (2010) 査読有

⑧ M. Iwanaga, “Subwavelength electromagnetic dynamics in stacked complementary plasmonic crystal slabs,” Opt. Express Vol. 18, 15389-15398 (2010) 査読有

[学会発表] (計15件)

①岩長祐伸、円環孔型プラズモニック結晶における固有モードと増強電磁場、第59回応用物理学関係連合講演会、24年3月18日、早稲田大学

②岩長祐伸、フィッシュネット・メタマテリアルにおける面内プラズモン伝播、日本学術振興会光エレクトロニクス第130委員会・第280回研究会、23年12月8日、東京理科大学(招待講演)

③岩長祐伸、フィッシュネットメタマテリアルにおいてウムクラップ励起されるプラズモニック共鳴、第72回応用物理学学会学術講演会、23年8月30日、山形大学

④M. Iwanaga, A new class of plasmonic crystals: the eigen modes, field enhancement, and applications, Photonics West 2012, 23年1月27日、米サンフランシスコ

⑤岩長祐伸、先進プラズモニック構造におけるサブ波長空間の電磁波解析、COMSOLカンファレンス2010東京、22年12月3日、東京・秋葉原UDXカンファレンススペース

⑥岩長祐伸、積層メタマテリアルで可能になる究極的なサブ波長スケールの光波操作、国際高等研究所プロジェクト「メタマテリアルの開発と応用」研究会、22年11月6日、京都府京田辺市・国際高等研究所(招待講演)

⑦岩長祐伸、相補的に積層した2次元プラズモニック結晶スラブにおけるサブ波長電磁ダイナミクス、第71回応用物理学学会学術講演会、22年9月16日、長崎大学

[図書] (計2件)

①M. Iwanaga et al., InTech, Nanorods, 2012, p. 75-92

②岩長祐伸 他、エヌティーエス、プラズモニック—光・電子デバイスの開発最前線、2011、p. 37-53

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

名称：円二色性素子

発明者：岩長祐伸

権利者：独立行政法人物質・材料研究機構

種類：特許

番号：特願 2010-276146

出願年月日：22年12月10日

国内外の別：国内

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

http://samurai.nims.go.jp/IWANAGA_Masanobu-j.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩長 祐伸 (IWANAGA MASANOBU)

物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・主任研究員

研究者番号：20361066

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし