

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24246037

研究課題名(和文) 微細構造表面プラズモン共鳴による近接場光の波長制御とエネルギー変換

研究課題名(英文) Energy conversion using spectral controlled near-field radiation by Plasmon resonance along nano-scaled periodical structured surfaces

研究代表者

花村 克悟 (Hanamura, Katsunori)

東京工業大学・理工学研究科・教授

研究者番号：20172950

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究において、ピラーアレイ構造表面を対向させることにより、ピラー間隙間の表面プラズモン共鳴より波長制御輸送が可能となること、およびピラートップ面においてs偏光波となる電磁波はピラー側面においてp偏光波となることから、長波長成分のエネルギー輸送はむしろ平滑面に比べて抑制されることが示された。また、スプリットリング共鳴器アレイ構造を利用した白熱電球により、電気から可視光への変換効率が通常の2倍となることが示された。

研究成果の概要(英文)：In this study, spectral control of near-field radiation transfer was investigated through numerical simulation for pillar array structured surfaces with a low aspect ratio channel. The near-field radiation transfer was enhanced by interference of Surface Plasmon Polaritons, in which a short distance and a long distance propagating modes contributed to peak radiation fluxes at different frequencies in a range of near infrared ray. The peak radiation flux increased by a factor of three compared with the smooth surfaces. Moreover, near-field radiation transfer for s-polarized wave with a low frequency was suppressed compared with that with a high frequency by using the pillar array structured surface. In addition, a split ring resonator array surface manufactured could convert electricity into visible light with conversion efficiency of 20% that was two times higher than the conventional tungsten filament lighting fixture.

研究分野：熱工学

キーワード：近接場光 波長選択 表面プラズモン プラズモン共鳴器 エネルギー変換

1. 研究開始当初の背景

放射体表面からふく射の波長程度の範囲に局在する近接場光は、もはやプランクの法則には従わず、その表面に近づくにつれ指数関数的にふく射エネルギー密度が増大することが予測されている。この高エネルギー密度の利用として、GaSb 製光起電力電池(波長 1.8 ミクロン以下の近赤外域・可視光域を電力に変換可能)を 800 の放射体表面に数百ナノオーダーまで近づけた実験において、従来の伝ば光輸送に比べて、近接場効果により、発電密度が数倍(4 倍)といったオーダーで高くなること、本研究代表者により確認されている。このとき、電力に変換されない長波長成分(波長 1.8 ミクロン以上)も、同じく近接場効果により電池へ大量に輸送され、電池冷却用の冷却水への熱損失となる。このため、近接場光についても波長制御が不可欠となる。これについては未開拓の領域であり、主に通信や信号の伝達への応用を目指すフォトニック結晶の研究とは、異なるアプローチが必要と考えられる。この近接場効果を利用した熱輸送の促進に関する研究として、加熱面と被加熱面の隙間にナノオーダーのスペーサーを挿入した、僅か 30 度の温度差における実験や、先端が球面となったミクロンオーダーの微小針を平板に近づける、といった実験などが行われている。さらに、GaSb 電池を仮定したエネルギー変換として、向かい合う加熱表面を 2000K とした数値計算が、少々非現実的ではあるが、ようやく進められるようになった。一方、研究代表者らによる数値シミュレーションにより、向かい合う周期的ピラー構造表面によって近接場光の波長制御が可能となる結果が出始めた。これは、近接場成分がピラー表面に沿って輸送され、ピラー間の溝(数十ナノオーダー)構造内部において共鳴(プラズモン共鳴)することによって輸送量が増大すると予想している。詳細な機構は不明な点が多いが、この溝の深さにより輸送量のピーク波長を制御できることまではわかってきた。このように近接場光の波長制御は、特定の波長のエネルギーを選択的に、かつ高密度輸送できる可能性を秘めており、新たなエネルギー変換手法として発展性が高いと思われる。また、最近、本研究代表者は、シリカ製光ファイバーを 800 の加熱表面にナノオーダーまで近づけることにより、その表面近傍に局在する近接場成分の検出に成功している。これは、局在する近接場光が光ファイバーにより散乱され、伝ば光となって検出器に達していることを表している。すなわち、共鳴領域の波長の電磁波を光ファイバーに代わる誘電体を対向させることで、その波長の伝ば光を強めることが可能となる。例えば可視光領域の近接場成分を、上記のように共鳴させ、かつ散乱させることによって、低温白熱フィラメントによる可視光の放射出力が増大(プランクの制約がない)することになる。これは白熱灯照明の

新たな可能性を示唆している。本研究では、近接場光発電とともに、この可視光も含めて、広義の電磁波への波長選択エネルギー変換を目指すものとする。

2. 研究の目的

本研究は、放射体表面に誘起される近接場光(エバネッセント波)およびこの近接場光と表面近傍の伝ば光との合成波である表面プラズモンを自在に波長制御できる、周期的な微細構造や薄膜構造などの表面性状を、放射体表面近傍の電磁波動論や固体物性論などに基づいた分光学的アプローチにより明らかにするとともに、それをを用いた、電力や光照明さらに電磁波輸送など画期的なエネルギー変換を試みることを目的とする。

3. 研究の方法

金属表面の周期的ピラー構造により近接場光の波長制御輸送が可能となる。このピラー間のチャンネル構造に沿う表面波と伝播光の波長制御との関係を明らかにするため、タングステン金属を用いて、その構造の製作を試みた。厚さ 300 μm の Si 基板に厚さ 200nm のタングステン薄膜をスパッタし、その表面にレジストを塗布し乾燥させる。その後、電子線描画装置によって、このレジストに幅 80nm のグリッド状チャンネルの描画を行い、潤沢超純水付きクリーンドラフト中で現像を行う。その後、XeF₂ ガス使用の反応性イオンエッチング装置を用い、タングステン表面に周期的ピラー構造を製作した。このサンプルの下部よりハロゲンランプの平行光を照射する。そして透過光は中心波長 1100nm、1300nm、1500nm のバンドパスフィルターにより分光されたのち赤外域の光電子増倍管(PMT、感度波長 950nm~1700nm)にて検出される。また、このサンプルに平面波を入射した場合の透過性について、空間差分時間領域(FDTD)法を用いた数値シミュレーションを行い、実験との検討を行った。さらに、このピラー構造を対向させて配置した場合の近接場ふく射輸送量を製作されたタングステン製ピラー構造に合わせて数値シミュレーションを行った。

一方、金(Au)などのように赤外域において放射率の低い表面に、赤外域において吸収係数が無視しえるほど小さい透明絶縁体薄膜をスパッタし、その表面にスプリットリング共振器アレイを配置させた放射体により、従来のタングステンフィラメント照明に比べて可視光への飛躍的に高い変換効率を有する照明法を試みた。

4. 研究成果

レジストの電子線描画と反応性イオンエッチングにより、厚さ 300 μm の Si 基板上の、厚さ 200nm のタングステン金属表面に、ピッチ 800nm、溝深さ 160nm、溝幅 100nm のピラーアレイ構造を製作することができた。この

構造に平行光を照射し、その透過光強度を、厚さ 40nm のタンゲステン平滑面による透過高強度と比較した。その結果、構造を有する試料の透過光強度は、構造を有しない試料の結果と比較し、波長 1.1 μm 付近では厚さ 40nm の平板と同程度、波長 1.3 μm 、1.5 μm 付近においてはその 1.2 倍程度の信号強度となり、構造による輸送増強効果の波長依存性が確認された。また、この実験の構造に対する数値シミュレーションを行った結果、平板と比較し、構造を設けることにより特定の波長において電磁波の透過量が極大するといった実験結果を再現できることが分かった。また周期を増加させ溝構造を密にするにつれ、透過電磁波強度は波長が 0.4 μm から 2.0 μm の領域全体で増大する一方、ピークを与える波長はわずかに短波長側にシフトする傾向が見られるものの、ほとんど変化しないことがわかった。ピラー溝のうち、入射波の電場の振動方向を含む平面がピラー側壁に対し直行する p 偏光となる場合のみ、ピラー溝内部で電場が大きくなることも確認された。以上から、入射波が p 偏光となるピラー溝内部で表面プラズモンポラリトン (SPP) が励起され、その進行波が各々のピラー溝内部で共鳴を生じ、その結果波長に関して透過率の極大が現れたと予想できる。

有限な大きさの構造内における SPP の多重反射問題は、良く知られている Fabry-Perot 共振器と同様の原理により取り扱うことが可能である。共振器における透過率は共振器の有効長さをパラメータとし、有効長さが内部を進行する電磁波の半波長の整数倍となった場合、共振条件が満たされ透過率が極大となる。数値シミュレーションにおいても、およそ 450nm 周期で透過率のピークが現れており、この周期は溝内部における SPP の半波長の長さによく一致した。このことから、本研究で対象となる薄膜の浅い溝構造においても、電磁波輸送のピークは、溝内部を進む電磁波の多重反射による共振条件により与えられると考えられる。

実験との比較のため、ピラー溝深さを変化させた場合の波長 1.3 μm の平面波を入射させた際の電磁波の透過性を計算すると、溝部における SPP の共振条件から、溝深さの増加に対する強度の増加は一様ではないことがわかった。ドライエッチングの時間を変えることにより溝深さのみを変化させ、1.3 μm の平行光レーザを用いた光学系の実験装置により波長試料透過光の測定を行った。その実験結果は数値シミュレーションとよい一致を示しており、ピラー溝部の SPP 共振により透過光強度が増大することが実証されたことになる。

一方、2 つのピラーアレイ構造表面を対向させた場合、高アスペクト比の溝を有するピラー構造の近接場ふく射輸送の促進機構は、ピラーの側面やトップ面に励起される表面プラズモンの干渉によって説明でき、ピラー

幅を狭くすることにより側面に励起される表面プラズモンが結合しピークが増えることがわかった。また、周期的ピラー構造を施すことにより、ピラートップ面に到達する s 偏光 (トップ面からみて) が減り、低周波数域において近接場ふく射輸送が抑制される興味深い結果が得られた。さらに上下ピラー構造のピラー高さが異なる場合、高さが同じ場合に比べてピークの大きさが小さくなる。すなわち、近接場におけるふく射流束スペクトルの制御には放射体側の構造だけでなく受光体側の構造も考慮する必要があることがわかった。なお上下ピラー構造の溝の位置がずれた場合においても、近接場ふく射輸送の促進効果が得られることがわかった。

一方、スプリットリング共振器については、放射率の小さな金属表面に、吸収係数が小さい透明絶縁体をスパッタすることにより、その表面に施された共振器の周波数に相当する波長の光を多く放射することが可能となり、逆に赤外域の放射を抑制するといった波長選択が可能となっていることがわかった。この変換効率、従来の白熱電球に比べて 2 倍に達することが示された。

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 12 件)

Kimito Ishihara, Makoto Kashiwagi, Tubasa Matsuo, Minoru Iwata, Koji Miyazaki, Enhanced Emission of a Silica Photonic Crystal, Proceedings of ISTP-25, 4 pages, Nov. 2014. 査読有

Yusuke Ashida, Naphatsorn Vongsoasup, Daisuke Hirashima, Katsunori Hanamura, Spectral Control of Near-Field Radiation using Pillar Array Structure, Nano-Rad2014, Proceeding of Nano-Rad2014, Nano-Rad2014, Jun. 2014. 査読有

Makoto Kashiwagi, Zhouya Zheng, Kimito Ishihara, Makoto Egami, Koji Miyazaki, Spectral Absorption Enhancement of a Gold Coated Micro-particle Array, Proceedings of NanoRad 2014, 2 pages, June 2014. 査読有

Katsunori Hanamura, SPECTRAL CONTROL OF NEAR-FIELD RADIATION THROUGH SURFACE PLASMON POLARITON INTERFERENCE, ASME 2013 Heat Transfer Summer Conference, Proceedings of the ASME 2013 Heat Transfer Summer Conference, ASME, HT2013, 17601, Jul. 2013. 査読有

芦田友祐, 吉田純, 花村克悟. エバネッ

セント波効果を利用した GaSb 熱光起電力発電, 日本機械学会論文集 (B編), 一般社団法人 日本機械学会, Vol. 79, No. 799, pp. 229-233, Mar. 2013. 査読有

Alejandro Datas, Daisuke Hirashima, Katsunori Hanamura. FDTD Simulation of Near-Field Radiative Heat Transfer between Thin Films Supporting Surface Phonon Polaritons: Lessons Learned, Journal of Thermal Science and Technology, The Japan Society of Mechanical Engineers, Vol. 8, No. 1, pp. 91-105, Mar. 2013. 査読有

J. Takahara and Y. Ueba, "Thermal Infrared Emitters by Plasmonic Metasurface", Proceedings of SPIE 8818, 88180X-1-9 (2013). (Invited Paper) (2nd Place Best Presentation Award) 査読有

上羽陽介、高原淳一, "スプリットリング共振器による熱輻射制御", 信学技報 Vol. 112, No. 398 (2013) PN2012-57, pp.197-200. 査読有

Tomoyuki Kumano, Katsunori Hanamura. Development of a Prototype Thermophotovoltaic Power Generation System Using Super-Adiabatic Combustion in Porous Quartz Glass, Journal of Thermal Science and Technology, The Japan Society of Mechanical Engineers and The Heat Transfer Society of Japan, Vol. 17, No. 4, pp. 549-562, Aug. 2012. 査読有

Y. Ueba and J. Takahara, "Spectral control of thermal radiation by metasurface with split-ring resonators", Appl. Phys. Express (APEX) Vol. 5, (2012) pp.122001-122003. 査読有

Koji Miyazaki and Hiroki Osawa, Reflectance of Photonic Crystals of Self-assembled Silica Particles, Proceedings of International Workshop on Nano-Micro Thermal Radiation 2012, pp. 44-45, May 2012. 査読有

Hiroki Osawa, Ryota Nakano, Kazune Takubo, and Koji Miyazaki, Spectral Absorptance of Micro-structures of Self-assembled Silica Particles, Proceedings of International Workshop on Nano-Micro Thermal Radiation 2012, pp. 120-121, May 2012. 査読有

〔学会発表〕(計 80 件)

(1)Naphatsorn Vongsoasup, Daisuke

Hirashima, Katsunori Hanamura. Spectral Control of Near-field Radiation in GaSb Thermophotovoltaic System, 9th Japan-Korea-China Student Symposium 2015, 9th Japan-Korea-China Student Symposium 2015 proceedings, 9th Japan-Korea-China Student Symposium 2015, pp. 65-66, Mar. 19, 2015. 東京工業大学 (東京)

(2)藤田一慧, 平島大輔, 花村克悟. 周期的チャネル構造表面の光学的特性に関する研究, 第 35 回日本熱物性シンポジウム, 第 35 回日本熱物性シンポジウム 講演論文種, 日本熱物性学会, pp. 181-183, Nov. 23, 2014. 東京工業大学 (東京都)

(3)ウォンサオスップ ナパトソーン, 芦田友祐, 平島大輔, 花村克悟. プラズマレイ構造表面による近接場光の波長制御に関する研究, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2014, 講演論文集, 一般社団法人 日本機械学会, No. 14-59, Nov. 8, 2014. 芝浦工業大学 (東京都)

(4)松尾翼, 柏木誠, 石原公人, Zheng Zhuoya, 宮崎康次, 欠陥を有するフォトリック結晶の波長選択的熱ふく射特性, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2014, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2014 講演論文集, 一般社団法人 日本機械学会, No. 14-59, E214, Nov. 9, 2014. 芝浦工業大学 (東京都)

(5)J. Takahara and Y. Ueba, "Thermal Radiation Control by Plasmonic Resonators: from Microcavity to Metasurface and Metafilament," JSAP-OSA Jopint Stmposia 2014, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 19a-C3-6, September 19 (2014). (Invited Talk)

(6)高原淳一: 「メタ表面による熱輻射制御～マイクロキャビティからメタフィラメントへ」, 日本学術振興会 メタマテリアル第 187 委員会 第 2 回研究会 (開催地: 機械振興会館、東京都) 平成 26 年 9 月 12 日 (招待講演)

(7)高原淳一: 「メタ表面による熱輻射スペクトル制御と応用」, 照明学会全国大会 光源・照明システム分科会 シンポジウム「電球再来はあるか? ~ 白熱電球の技術革新 ~」 (開催地: 埼玉大学, 埼玉県, さいたま市) 平成 26 年 9 月 4 日 (招待講演)。

(8)J. Takahara, "Spectral Control of Thermal Radiation by Metasurface", 14th International Symposium on the Science and Technology of Lighting (LS14), Como, Italy, 24 June (2014). (Invited Talk)

(9) 柏木誠, 鄭卓亜, 石原公人, 江上誠, 宮崎康次, 金属コーティングしたフォトニック結晶の熱ふく射特性, 第 51 回日本伝熱シンポジウム, 日本伝熱学会 第 51 回伝熱シンポジウム講演論文集, 一般社団法人 日本伝熱学会, H333, May21, 2014. アクトシティ浜松 (静岡県, 浜松市,)

(10) Wakabayashi, H. and Matsumoto, M.: MD-like and FDTD Calculations on Mechanism of Coherency of Emitted Thermal Radiation, The Thirteenth Tsinghua - Seoul National - Kyoto University Thermal Engineering Conference, 2013, (Conference Book), (Tsinghua University), Beijing, pp.17-24, (2013-11-16).

(11) 高原淳一: 「メタ表面による熱輻射制御」, 照明学会 第 2 回白熱光源の革新技術研究調査委員会 (開催地: 大阪大学フォトニクスセンター, 大阪府, 吹田市) 平成 25 年 8 月 20 日 (招待講演)

(12) J. Takahara and Y. Ueba, "Thermal Infrared Emitters by Plasmonic Metasurface", Nanostructured Thin Films VI in SPIE Optics+Photonics, San Diego, Proceedings of SPIE 8818-33 (Aug.29, 2013). (Invited Paper) (2nd Place Best Presentation Award)

(13) Y. Ueba and J. Takahara, "Controlling thermal emission by metamaterial", 3rd Korea-Japan Metamaterials Forum, J-10, Seoul, Korea (June 28, 2013). (Invited)

(14) J. Takahara, "Thermal Radiation Control by Metasurface", 8th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, December 11, Icho-Kaikan, Osaka University, Japan, pp.51-52, C-2 (2012).

(15) Makino, T., Uno, T., Wakabayashi, H. and Matsumoto, M.: An MD-Like Simulation on Mechanism of Coherency of Emitted Thermal Radiation, IFHT2012 The Third International Forum on Heat Transfer, Nagasaki, Japan, no. IFHT2012-041, 6 pages, (2012-11-13).

〔図書〕(計 7 件)

花村克悟, 河野正道, 塩見淳一郎, 宮崎康次, エネルギー変換に関わる熱物性・界面物性, 計測と制御, Vol.54, pp.327-332, May 2015.

花村克悟. 波長選択近接場ふく射輸送を

用いた高密度光起電力発電への挑戦, 機械の研究, Vol. 67, No. 4, pp. 284-288, Apr. 2015.

Wakabayashi, H.: §9.4 Spectral Emissivity and Reflectance Measurements of Oxidized Metal, Experimental Methods in the Physical Sciences, Spectrophotometry: Accurate Measurement of Optical Properties of Materials, Germer, T. A., Zwinkels, J. C. and Tsai, B. K., eds., vol.46, Elsevier, (ISBN: 978-0-12-386022-4), pp.345-349, (2014-07-10).

日本熱物性学会編 花村克悟ら, ナノ・マイクロスケール熱物性ハンドブック, 4.10.2 極微小領域のふく射性質測定法, 養賢堂, pp.247-253, June 2014.

高原淳一 (分担), "2.3 フォトン輸送", "3.4 ナノ・マイクロ構造体のふく射物性のサイズ・構造効果", ナノ・マイクロスケール熱物性ハンドブック, 日本熱物性学会編 (養賢堂, 2014).

若林英信: §4.10.1 微小領域の広波長域高速ふく射スペクトル分光法, ナノ・マイクロスケール熱物性ハンドブック, 養賢堂, pp.243-249, (2014-06).

花村克悟. 熱ふく射の放射波長制御とエネルギー変換 周期的微細構造によるメタマテリアル創成の可能性, 機能材料 7 月号, シーエムシー出版, pp. 29-34, Jul. 2013.

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

高原淳一 「阪大 可視光を増大 「波長変換」照明を高効率に」、花村克悟 「東工大 給湯器の赤外光から電力」、日経産業新聞 2015 年 2 月 12 日.

高原淳一 「白熱電球効率 2 倍 ~ 阪大 LED 並み省エネ狙う」、日経産業新聞 2015 年 1 月 28 日.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

花村 克悟 (HANAMURA, KATSUNORI)

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号: 20172950

(2)研究分担者

牧野 俊郎 (MAKINO, TOSHIRO)
京都大学・工学(系)研究科・教授
研究者番号: 30111941

宮崎 康次 (MIYAZAKI, KOJI)
九州工業大学・工学(系)研究科(研究院)・
教授
研究者番号: 70315159

高原 淳一 (TAKAHARA, JUNICHI)
大阪大学・工学(系)研究科・教授
研究者番号: 90273606

森本 賢一 (MORIMOTO, KENICHI)
東京大学・工学(系)研究科・講師
研究者番号: 90435777

若林 英信 (WAKABAYASHI, HIDENOBU)
京都大学・工学(系)研究科・助教
研究者番号: 00273467

(3)連携研究者

なし