

平成 30 年 5 月 25 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2013～2017

課題番号：25220607

研究課題名(和文) 自在な熱輻射制御のための新技術/概念の構築

研究課題名(英文) Development of new techniques/concepts for arbitrary thermal emission control

研究代表者

野田 進 (Noda, Susumu)

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：10208358

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 140,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、電子系と光子系の両状態制御により、物体からの熱輻射を望む波長に望む線幅で集約する技術、また、熱輻射を動的かつ超高速に制御する技術など、熱輻射を自在に制御・利用するための新技術や概念を構築することを目的として研究を行った。その結果、(1)黒体輻射光源と比較して1/100以下の線幅を有する超狭帯域中赤外光源の開発、(2)電圧印加による超高速熱輻射変調(~MHz)の実証、(3)1000以上で動作する近赤外狭帯域熱輻射光源の開発、(4)中間基板を介した光源と受光素子の近接による黒体リミットを超える狭帯域熱輻射伝達手法の発見、に成功した。

研究成果の概要(英文)：In this project, we investigated new concepts and techniques to realize arbitrary control of thermal emission, such as the conversion from a broadband to a narrowband thermal emission spectrum with minimal loss of energy at a desired wavelength and high-speed control of thermal emission. We have successfully demonstrated the following: (1) the development of mid-infrared ultra-narrowband thermal emitters whose linewidths are less than 1/100 of that of a blackbody emitter, (2) the realization of ultra-fast electrical control of thermal emission (~MHz), (3) the development of near-infrared narrowband thermal emitters operating above 1000, (4) the discovery of a scheme of narrowband thermal radiation transfer exceeding the blackbody limit via near-field coupling of an emitter and an intermediate transparent substrate attached to the top of an absorber.

研究分野：光量子電子工学

キーワード：フォトニック結晶 熱輻射制御 量子井戸 半導体

1. 研究開始当初の背景

一般に、高温物体から生じる発光(熱輻射)は、極めて幅広いスペクトルを有し、その応答速度は極めて遅い。このことが、熱輻射を活用した光源の、エネルギー利用効率の悪さ、動作速度の遅さにつながっていた。ここで、高温物体からの熱輻射を、望む波長かつ望む線幅に集約し、さらにその応答速度を高速化する技術が確立できれば、高効率・高速の分析用光源としての発展、また、太陽光を始めとする熱光発電応用における光電変換効率の大幅な増大につながるものと期待される。

通常、熱輻射は、連続した周波数をもつ電子系と光のランダムな相互作用により起こるために、幅広いスペクトルをもつ。それに対し、研究代表者等は、電子系と光子系の状態を同時に操作し、上記の相互作用が特定の帯域のみで生じるように制御するという独自の概念を提唱した。その結果、研究開始時点において、黒体の約 1/30 の線幅の狭帯域熱輻射スペクトルを実証することに世界で初めて成功した。ただし、さらなる線幅狭窄化は実現しておらず、集約波長も波長 10 μm 付近に限定されていた。また、応答速度の高速化に関する検討はなされておらず、輻射強度の上限が同温度の黒体リミットで決定されるなど、前述した応用へ展開するためには多くの課題が残されていた。

2. 研究の目的

以上の背景のもと、研究代表者等は、より自由度の高い熱輻射制御を実現することを目指して、以下の4つの課題を設定し、研究を推進した。

(1) 熱輻射線幅のさらなる狭帯域化の実現: 熱輻射でありながら、(レーザとも見間違えるような)単一スペクトルで極めて狭い線幅をもつ高効率な熱輻射を実現する。

(2) 熱輻射を動的かつ超高速に制御する技術の確立: 通常、熱輻射強度は物体の温度に依存して決定されるため、加熱・冷却に要する時間が極めて長く、動作速度は、数ミリ秒~数秒(数 Hz~百 Hz 程度)となる。本研究により、この動作速度を、格段に(10,000 倍程度以上)速め、これまでにない斬新な光源を実現する。

(3) 熱輻射の集約波長を近赤外 (~1 μm 域)へと展開する手法の開拓: 熱輻射の集約波長についても、各種分析用光源として重要な 10 μm 近傍の中赤外域のみならず、熱光発電等の応用において重要な 1 μm 帯へと展開し、広い応用を可能にする。

(4) 同温度の黒体リミットを超えてより高強度な熱輻射を引き出す概念・手法の開拓: 通常、熱輻射光源から得られる最大輻射強度は、自由空間の状態密度による制限を受けるため、同じ温度における黒体強度を超えること

が出来ないが、本研究では、自由空間モードを介さないことで、より強い熱輻射を引き出す手法・概念を開拓する。

以上の4つの課題の実現を通して、高温物体から生じる熱輻射を自在に制御する新技術・概念を構築し、ひいては「高温ナノフォトニクス」というべき学術分野の基礎を確立することを目指した。

3. 研究の方法

試料作製: 材料としては、中赤外域の素子については、GaAs/AlGaAs 量子井戸構造を、近赤外域の素子については、主として Si を用いた。電子ビーム露光、ICP エッチングによる加工により、フォトニック結晶の作製を行なった。

光学特性評価: 光源の温度は外部ヒータによる加熱あるいは素子に電流を流すことによるジュール加熱を用いて制御し、光源の発光イメージを Si-CCD、あるいはマイクロボロメータアレイ(赤外線カメラ)によって観察すると共に、輻射スペクトルを Si-CCD と InGaAs を装備したグレーティング型分光器および、MCT 検出器を装備したフーリエ変換型分光器によって測定した。放射率の評価は、光源と同じ面積の疑似黒体塗料を塗布した試料を同じ温度に加熱した際の輻射スペクトルと比較することで行った。

解析: フォトニック結晶の設計や、動的制御に伴う動作解析は、大型計算機等を利用し、RCWA 法、FDTD 法などの解析手法により行なった。

4. 研究成果

(1) 熱輻射線幅のさらなる狭帯域化の実現:

図 1(a)に検討を行った狭帯域な中赤外熱輻射光源の模式図を示す。本光源は、中赤外域の目的波長でサブバンド間遷移による光吸収(熱輻射)を示す n 型 GaAs/AlGaAs 量子井戸に、フォトニック結晶構造を導入した光源である。はじめに、フォトニック結晶の形状が熱輻射スペクトルに与える影響の考察を行った結果、同図に示すような、円形ロッドを正方格子状に並べたフォトニック結晶を利用することで、サブバンド間遷移と相互作用する共振モードの数を1つに限定することが可能になり、不要な輻射ピークの生じない単峰な輻射を実現できることを見出した。次に、上記の共振モードから得られる輻射ピークの線幅についてモード結合理論による詳細な解析を行った結果、共振モードの放射損失で決まる放射 Q 値と、サブバンド間遷移の吸収量で決まる吸収 Q 値を一致させつつ向上させることで、極めて線幅が狭く高強度な熱輻射が得られることを見出した。その上で、図 1(a)に示す構造では、単位格子内に半周期ずらして配置された2つ円形ロッドの半径の差(r_1-r_2)を微調整することで、共鳴モードの放射 Q 値を向上できることを見出し、量

子井戸層数の調整による吸収 Q 値の向上と合わせることで、 Q 値 100~600 の超狭帯域な熱輻射スペクトルが実現することを理論的に明らかにした。

続いて、上で設計した狭帯域熱輻射光源の作製を行い、熱輻射スペクトルの評価を行った。光源作製の際には、フォトニック結晶領域を支える支持基板の体積を可能な限り縮小して基板から生じる不要な熱輻射損失を抑制するとともに、試料固定機構の改良を行うことで熱伝導損失の抑制も行った。電流注入加熱を行った際の作製した熱輻射光源の赤外線カメラ写真を図 1(b)に示す。フォトニック結晶を導入した領域から選択的に強い熱輻射が得られた。作製光源と参照用黒体光源に対して、同一の電力 (2.3 mW) を投入して加熱を行った場合の熱輻射スペクトルの測定結果を図 1(c)に示す。同図より、作製した光源では、波長 9.4 μm において、単峰かつ Q 値 100 を超える熱輻射が実現できていることがわかる。さらに、同一の電力を投入した場合に、狭帯域熱輻射光源では不要な輻射が抑制されるため、黒体試料と比較して大幅な温度上昇が実現し、ピーク波長において黒体の 12 倍以上の強度が得られていることが分かる[論文,]。上述の結果は、本光源のエネルギー利用効率が極めて高いことを示しており、中赤外領域の他の光源 (LED: 0.1%、量子カスケードレーザ: 5%等) と比較しても極めて高い発光効率 (12%) を得ることに成功した。さらに、開発した光源を用いて、波

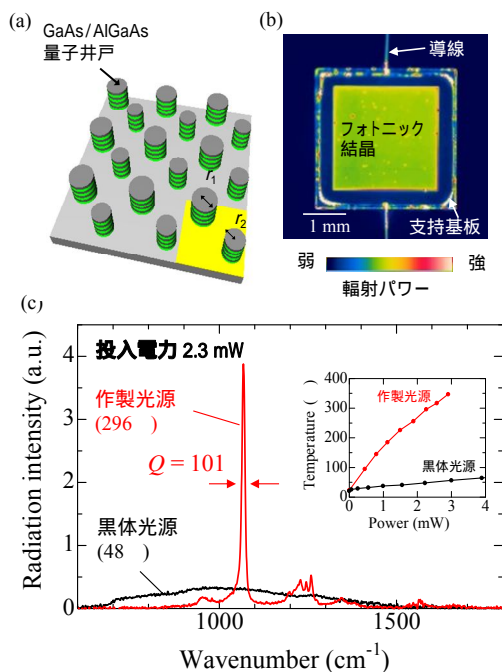


図 1: (a)開発した狭帯域中赤外熱輻射光源の模式図。(b)電流注入加熱時の光源の赤外線カメラ写真。(c) 同一パワー投入時の作製光源および比較用黒体の熱輻射スペクトル。 Q 値 100 を超える熱輻射を実現し、かつ黒体の 12 倍以上の輻射強度を実証した。

長フィルター無しで有機溶媒の赤外センシングが可能であることを実証することにも成功した[論文]。さらに、当初の予定にはなかったが、GaN/AlGaN 量子井戸とフォトニック結晶を利用した中波長赤外光源 (波長 3~5 μm) の開発にも着手し、波長 4 μm 帯においても Q 値 90 以上の狭帯域熱輻射ピークの観測に成功した[論文,]。

(2) 熱輻射を動的かつ超高速に制御する技術の確立:

本項目では、(1)の項目で開発を行った GaAs/AlGaAs 量子井戸にフォトニック結晶構造を導入した狭帯域熱輻射光源において、その輻射強度を高速に制御する手法について検討を行った。ここでは、光源温度を変調していた従来の手法とは異なり、光源の放射率 (黒体輻射強度に対する実際の強度の比) を制御するという新たな概念を導入した。具体的に、上記の狭帯域光源の放射率は、量子井戸のサブバンド間吸収とフォトニック結晶の共振モードの相互作用により決定されるため、量子井戸のサブバンド間吸収の大きさ (量子井戸のキャリア密度) を高速に変調することで、熱輻射強度の高速な制御の実現を目指した。

はじめに、上記の高速変調動作に関して、量子井戸の光励起による原理実証を行った。無添加の GaAs/AlGaAs 量子井戸に空孔型フォトニック結晶を形成した試料に、波長 830 nm の超短光パルス照射し、量子井戸の伝導帯の第 1 サブバンドに高速にキャリアを生成したところ、200 ps という超高速な熱輻射強度の変化の観測に成功した。続いて、当初の予定には掲げていなかった、実用上極めて重要な電気制御による熱輻射の高速変調にも取り組んだ。その実現のため、p-n 接合で、n 型量子井戸を挟んだ熱輻射光源を考案した。本構造では、p-n 接合に逆バイアスを印加して、量子井戸の第 1 サブバンドに存在する電子を引き抜くことが可能となり、電圧印加による熱輻射強度の変調が可能となる。作製光源を 100 に加熱し、逆バイアスを印加しない場合と 10 V の逆バイアスを印加した場合の熱輻射強度分布を、赤外線カメラにより測定した結果を図 2(a)に示す。熱輻射強度が、逆バイアス印加により大きく減少している様子が確認された。さらに図 2(b)に電圧印加による熱輻射スペクトルの変化と、変調パワーの周波数依存性の測定結果を示す。電気制御により、単一波長 (9.2 μm) の熱輻射強度のみを大きく変調することに成功し、従来の温度変化による変調 (最大 100 Hz 程度) と比較して、約 10,000 倍もの高速熱輻射変調 (~ MHz) が実現した。この成果は 2014 年に Nature Materials 誌[論文]に掲載されるとともに、様々な新聞・雑誌等においても取り上げられた。

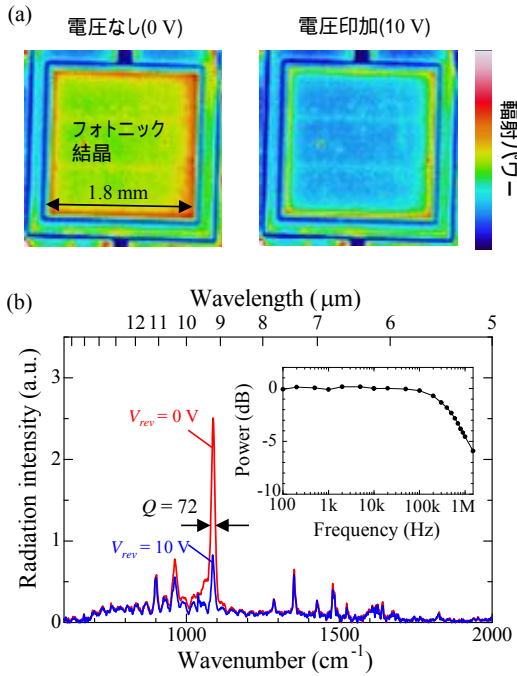


図 2: (a)狭帯域熱輻射光源の電圧制御の様子。(b)電圧印加による熱輻射スペクトルの変化。変調パワーの周波数依存性の測定結果を挿入図に示す。温度変化による変調(100 Hz 程度)と比較して、約 10,000 倍という高速での熱輻射の変調に成功した。

さらに、上記の電圧印加による熱輻射の高速制御が実現したことにより、熱輻射制御の自由度が格段と向上し、当初は想定していなかった、多様な熱輻射スペクトルの制御が可能となった。例えば、上記の狭帯域熱輻射光源を、フォトニック結晶の格子定数を変化させながら 4 つ同一チップ上に集積化し、各フォトニック結晶の輻射強度を印加電圧により変調することで、図 3 に示すように 4 波長の狭帯域熱輻射ピークを高速に切り替えることができる波長切替型中赤外熱輻射光源の開発に成功した。本成果は Applied Physics Letters 誌の表紙に掲載されるとともに、Nature Photonics 誌の解説記事でも取り上げられた[論文]。また、電圧印加により輻

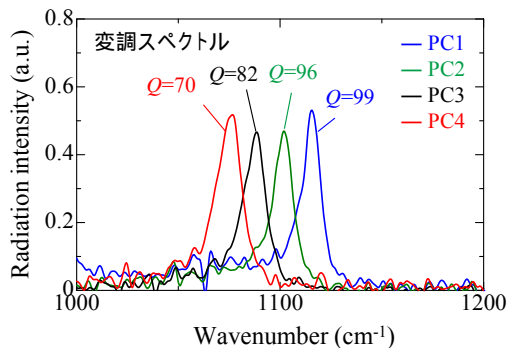


図 3: 波長切替可能な狭帯域熱輻射光源の開発。単一チップでの多波長の熱輻射の高速切替動作に世界で初めて成功した。

射強度のみならず発光線幅も変化させられることが判明し、それを利用して Q 値 200 を超える超狭帯域熱輻射スペクトルの実証にも成功した[論文]。さらに、フォトニック結晶の複数のモードを同時に利用することで、中赤外域の離れた 2 波長を同じ発光面から出射可能な光源の原理実証にも成功した。

(3) 熱輻射の集約波長を近赤外 (~1 μm 域) へと展開する手法の開拓:

上述の中赤外域での熱輻射制御に加え、本項目では、熱光発電への応用が可能な近赤外域での狭帯域熱輻射光源の開発に取り組んだ。ここでは、太陽電池で光電変換を行うことができない長波長域の不要な熱輻射を抑制することが重要である一方で、光源の Q 値は、必ずしも、項目(1)のように高くする必要はない。このような観点から光源に用いる材料の検討を行った結果、近赤外域でバンド間遷移による大きな光吸収を有し、かつ、1,000 K 以上の高温への加熱が可能な材料として Si を利用することとした。また、高温での Si の吸収スペクトルについて詳しい検討を行ったところ、高温においては真性キャリアが発生するため、発光を抑制したい長波長域において、1,000 cm^{-1} 程度の比較的大きい自由キャリア光吸収が生じることが判明した。そこで、この帯域での放射率を抑制しつつ、近赤外域の熱輻射強度を維持するために、Si の体積を減少させつつ、効果的に共鳴モードを形成できる構造として、高さが 500 nm 程度のロッド型のフォトニック結晶が有効であることを見出した。作製した構造を図 4 の挿入図に示す。構造保持のための厚さ 1 μm の SiO_2 薄膜上に、高さ 500 nm のロッド型フォトニック結晶が形成されている。図 4 に、本構造を 1300 K に加熱した際に得られた熱輻射スペクトルと比較のための黒体輻射スペクトルを示す。同図より、波長 1 μm 以下の短波長域で高い放射率が得られるとともに、長波側については広い波長域に渡って放射率が抑制できることが分かる。本成果は Science Advances 誌に掲載される[論文]とともに、幸いにも、国際会議 SPIE(2016 年)にて Green Photonics Award を受賞するという栄誉を得る

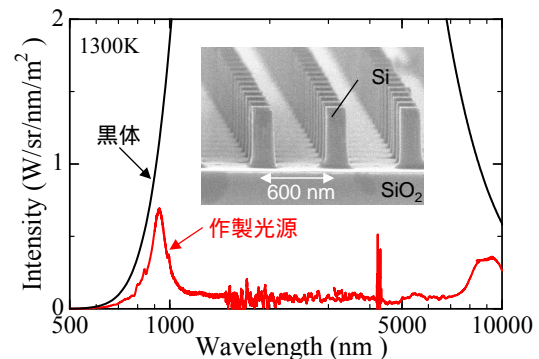


図 4: Si フォトニック結晶を利用した近赤外域での狭帯域熱輻射制御の実証。

ことに繋がった。さらに、上記の SiO₂ 薄膜上の Si フォトニック結晶は機械的強度が低く、面積拡大による高出力化が困難であるため、サファイア基板や MgO 基板等の長波長域での透明性の高い基板の上に Si フォトニック結晶を設けた光源の作製プロセスの開発も行い、大きさ 1 cm² を超える大面積な近赤外狭帯域熱輻射光源の作製にも成功した[論文]。

(4) 同温度の黒体リミットを超えてより高強度な熱輻射を引き出す概念・手法の開拓：

本項目では、物体から、同じ温度の黒体輻射強度を超えて熱輻射を引き出す手法について検討を行った。そのために研究代表者等は、光源から自由空間へ熱輻射を取り出すのではなく、光源に受光素子を波長以下の距離まで近接させたときに生じる、近接場光を介した熱輻射伝達（近接場熱輻射伝達）に着目し、そこに前述した電子系・光子系制御を組み合わせることを検討した。はじめに、光源と受光素子を近接させた際の熱輻射スペクトルを解析するための一般的な解析手法の導出に成功した[論文]。次に、具体的な光源・受光素子システムとして、項目(3)で検討を行った Si を材料とした近赤外熱輻射光源と GaSb 受光素子を近接させた際の熱輻射スペクトルの理論解析を行った。その結果、光源と受光素子を厚さ数 μm 程度まで薄膜化しながら 100 nm 程度の距離まで近接させ、それらの間に高屈折率透明基板（高抵抗 Si 等）を挿入することにより、不要な帯域の熱輻射伝達を抑制しつつ、近赤外域のみで黒体限界を大幅に超える熱輻射を受光素子に伝達可能であることを見出した（図 5）。以上のように、“黒体限界を超えて熱輻射を引き出す手法を開拓する”という当初の目標に加えて、それを“特定の限られた帯域のみで”実現する手法を見出すことに成功した[論文]。この新たな知見は、熱光発電の高出力化・高効率化の実現につながる重要な成果であると位置づけられるため、研究代表者等は、平成 29 年度より、研究計画を再構築した新たな基盤研究 S の枠組みとして、上記近接場熱輻射伝達の体系的理論構築・試料作製・光学系構築に継続して取り組んでいる。

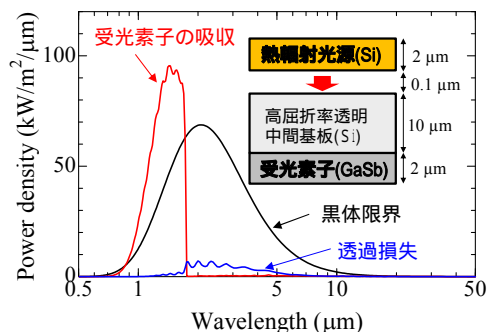


図 5: 近接場光により近赤外域で黒体限界を超える熱輻射伝達を実現した計算結果。

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 21 件) 全て査読有

T. Inoue, K. Watanabe, T. Asano, and S. Noda, “Near-field thermophotovoltaic energy conversion using an intermediate transparent substrate”, *Optics Express*, vol. 26, pp. A192-A208 (2018).

DOI:https://doi.org/10.1364/OE.26.00A192

M. Suemitsu, T. Asano, M. De Zoysa, and S. Noda, “Wavelength-selective thermal emitters using Si-rods on MgO”, *Applied Physics Letters*, vol. 112, 011103 (2018).

DOI:https://doi.org/10.1063/1.5010805

D. D. Kang, T. Inoue, T. Asano, and S. Noda, “GaN/AlGaIn photonic crystal narrowband thermal emitters on a semi-transparent low-refractive-index substrate”, *AIP Advances*, vol. 8, 015221 (2018).

DOI:https://doi.org/10.1063/1.5019387

D. D. Kang, T. Inoue, T. Asano, and S. Noda, “Demonstration of a mid-wavelength infrared narrowband thermal emitter based on GaN/AlGaIn quantum wells and a photonic crystal”, *Applied Physics Letters*, vol. 110, 181109 (2017).

DOI:https://doi.org/10.1063/1.4983020

T. Inoue, T. Asano, and S. Noda, “Near-field thermal radiation transfer between semiconductors based on thickness control and introduction of photonic crystals”, *Physical Review B*, vol. 95, 125307 (2017).

DOI:https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.125307

T. Asano, M. Suemitsu, K. Hashimoto, M. D. Zoysa, T. Shibahara, T. Tsutsumi, and S. Noda, “Near-infrared-to-visible highly selective thermal emitters based on an intrinsic semiconductor”, *Science Advances*, vol. 2, e1600499 (2016).

DOI:https://doi.org/10.1126/sciadv.1600499

T. Inoue, M. D. Zoysa, T. Asano, and S. Noda, “High-Q mid-infrared thermal emitters operating with high power-utilization efficiency”, *Optics Express*, vol. 24, pp. 15101-15109 (2016).

DOI:https://doi.org/10.1364/OE.24.015101

T. Inoue, M. D. Zoysa, T. Asano, and S. Noda, “On-chip integration and high-speed switching of multi-wavelength narrowband thermal emitters”, *Applied Physics Letters*, vol. 108, pp. 091101 (2016).

DOI: https://doi.org/10.1063/1.4942595

T. Inoue, M. D. Zoysa, T. Asano, and S. Noda, “Electrical tuning of emissivity and linewidth of thermal emission spectra”, *Physical Review B*, vol. 91, 235316, (2015).

DOI:https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.2

35316

T. Inoue, M. D. Zoysa, T. Asano, and S. Noda, "Realization of narrowband thermal emission with optical nanostructures", *Optica*, vol. 2, pp. 27-35, (2015).

DOI: <https://doi.org/10.1364/OPTICA.2.000027>

T. Inoue, M. D. Zoysa, T. Asano, and S. Noda, "Realization of dynamic thermal emission control", *Nature Materials*, vol. 13, pp. 928-931, (2014).

DOI: <https://doi.org/10.1038/nmat4043>

T. Inoue, M. D. Zoysa, T. Asano, and S. Noda, "Filter-free nondispersive infrared sensing using narrow-bandwidth mid-infrared thermal emitters", *Applied Physics Express*, vol. 7, pp. 012103, (2014).

DOI: <https://doi.org/10.7567/APEX.7.012103>

(他 9 件)

〔学会発表〕(計 163 件)

国際学会 (招待講演)

S. Noda, "Progress in Photonic Crystals," International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN18), SM4N.4, Würzburg, Germany, Jul. 10 (2017).

T. Asano, T. Inoue, S. Noda, "Narrowband thermal emitters based on photonic crystals," Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), SM4N.4, San Jose, United States, May. 14 (2017).

S. Noda, "Recent Progress in Photonic Crystals", OSA Frontiers in Optics / Laser Science (FiO/LS 2016), LF11.1, Rochester, New York, United States, Oct. 21 (2016).

S. Noda, "Progress and Future Prospects of Photonic Crystal Lasers", 25th International Semiconductor Laser Conference (ISLC 2016), AWS4, Kobe Meriken Park Oriental Hotel, Hyogo, Japan, Sep. 15 (2016).

T. Inoue, T. Asano, M. D. Zoysa, and S. Noda, "Highly efficient high-speed thermal emitters based on quantum wells and photonic crystals", META'16, the 7th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics, Malaga, Spain, July. 25 (2016).

S. Noda, "Recent progresses and their applications of photonic crystals", The Conference on Photonic and Electromagnetic Crystal Structures (PECS) XII, University of York, UK, Jul. 18 (2016).

S. Noda, "Thermal Emission Control by Photonic Crystals", OptoElectronics and Communications Conference (OECC2016) / Photonics in Switching 2016 (PS2016), Toki Messe Niigata Convention Center, Niigata Japan, Jul. 5 (2016).

S. Noda, "Manipulation of photons by photonic crystals", Compound Semiconductor Week 2016 (CSW 2016), Toyama, Japan, Jun. 26 (2016) (Short Course).

S. Noda, "Manipulation of Photons by Photonic Crystals", The 15th International Symposium on Science and Technology of Lighting (LS15), Shiran-kaikan, Kyoto, May 27 (2016).

(他 23 件)

国際学会 (一般講演) 16 件

国内学会 (招待講演) 25 件

国内学会 (一般講演) 90 件

〔産業財産権〕

出願状況 (計 12 件)

名称: 熱輻射光発電装置

発明者: 野田進、井上卓也、渡辺晃平、浅野卓

権利者: 国立大学法人京都大学

種類: 特許

番号: 特願 2017-034724 号

出願年月日: 2017 年 2 月 27 日

国内外の別: 国内

(他 11 件)

取得状況 (計 1 件)

名称: 熱輻射光源

発明者: 野田進、芝原達哉、デゾイサメーナカ、浅野卓、北野圭輔、鈴木克佳、井上卓也、石崎賢司

権利者: 国立研究開発法人科学技術振興機構

種類: 特許

番号: 特許第 6227627 号

取得年月日: 2017 年 11 月 8 日

国内外の別: 国内

〔その他〕

解説記事 8 件、

マスメディア等での記事掲載 9 件

ホームページ:

<http://www.qoe.kuee.kyoto-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

野田 進 (NODA, Susumu)

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号: 1 0 2 0 8 3 5 8

(2) 研究分担者

浅野 卓 (ASANO, Takashi)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 3 0 3 3 2 7 2 9

(3) 連携研究者

デゾイサ メーナカ (DE・ZOYSA, Menaka)

京都大学・白眉センター・特定助教

研究者番号: 4 0 7 4 0 3 9 5