

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02545

研究課題名（和文）プラズモン光吸収体の散乱評価と真の完全吸収構造の探求

研究課題名（英文）realization of true perfect absorption

研究代表者

西島 喜明 (Yoshiaki, Nishijima)

横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：60581452

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：時間領域差分法（FDTD法）による電磁界シミュレーションによって、散乱断面積と吸収断面積を定量的に評価する手法を確立することに成功した。積分球を使った計測から、散乱スペクトルを実際に測定することにも成功した。また、金属や誘電体層に吸収損失を導入することにより、実験的に真の完全吸収を実現できることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

実吸収に利用されていない光量を正確に見積もり、真の完全吸収構造を提案・実現させる道筋を明らかにすることは、光熱変換デバイスの更なる高効率化を実現する上で非常に重要であり、学術的にも大いに意義のある研究課題である。

研究成果の概要（英文）：We succeeded in establishing a method to quantitatively evaluate the scattering cross section and the absorption cross section by the electromagnetic field simulation by the FDTD method. We also succeeded in actually measuring the scattering spectrum from the measurement using the integrating sphere. We have also found that true perfect absorption can be achieved experimentally by introducing an absorption loss into a metal or dielectric layer.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：メタ表面 放射制御 完全吸収

1. 研究開始当初の背景

研究背景

光熱変換は、社会的な要請である持続可能な開発目標 (SDGs) を実現するエネルギー有効活用法として、基礎的に重要なエネルギー変換過程である。熱はエネルギーを使う中で必ず発生し、多くは利用されない損失的なエネルギーである。しかし、光熱変換の本質を理解し、発生する熱を積極的に活用することで、新たなエネルギーの有効利用の活路が開ける。

研究代表者は基盤研究 (C) (プラズモン発熱とフラクタル低反射構造による光熱電システムの構築, 16K04884, 2016-2018) において、プラズモン共鳴の光熱変換と太陽電池の光電変換を組み合わせたデバイスを提案し、トータルのエネルギー変換効率を向上させるシステムを構築した (Optical Materials Express, 2017, 特願 2017-071509 など)。さらに研究を進める中で、金属地板—誘電体—金属ナノ構造体 (MIM) で構成されるプラズモン光吸収体を利用すれば、極限的な光熱変換が実現できることを見出した。我々はこれまでの研究で 10 nm と非常に膜厚の薄い誘電体層であっても 90%以上の光吸収を実現できる構造体を提案し、(ACS Applied Nano Matererials, 2018)、それらを利用した光熱変換デバイスを構築することを実現した (Scientific Reports, 2019, ACS Sensors, 2019)。特に、LED を超える性能を持つ赤外単色熱放射デバイスや特定の波長で応答する赤外光検出デバイスの構築など、従来の赤外光デバイスを超越する新しい光熱デバイスを実現してきた。赤外光熱変換材料は、我々の提案する光源・検出器以外にも、例えば、放射冷却効果の促進にも注目されている。すなわち、自発的に環境温度を低下させることで、空調の消費電力を抑制につなげることができる。プラズモン光熱変換デバイスでもこれらの応用が実現できる。プラズモン光熱変換は、基礎的な原理から実用的なデバイスに向けた研究が世界的に大きく注目されている学問分野であり、将来的なスマート社会の実現に大きく貢献できる。

研究課題の核心をなす学術的「問い」

プラズモン光吸収体は誘電体部に光電場の局在が起こり、共鳴波長で低反射表面を実現する。従来、材料の光吸収率 (A) の評価方法は、光反射率 (R) により評価されてきた。すなわち、直接測定できない光吸収を、透過率 (T) と反射率を組み合わせた間接的な方法で評価するものである。この中で、プラズモン光吸収体は金属地板により光透過は抑制されており ($T=0$)、光散乱が無視できるならば ($S=0$)、反射率だけで吸収率を求められる ($A(\%)=100-R(\%)$) 計算になる。

しかし、この仮定には大きな誤りがあることを研究代表者は発見した。そもそも、一般的なプラズモン共鳴の光学特性は光散乱が主体である。金ナノ微粒子の光学特性を、Mie 散乱の理論に基づく厳密解で計算すると、光吸収の数倍の光散乱が存在する。従ってプラズモン光吸収体であっても、散乱は必ず存在するはずである。そこで、光ナノデバイスの設計で一般的な手法である FDTD 法 (時間領域差分法) でプラズモン光吸収体に対して、光吸収と光散乱を評価した。その結果、プラズモン光吸収体にも無視できない光散乱が存在することを発見した。特に 10%以下の無反射状態であっても、光吸収と光散乱がほぼ同じ割合で存在すること、構造によっては光散乱が実に 8 割にもおよぶ割合で存在することを明らかにした。吸収光は最終的に熱に変換されるエネルギーであり、光熱変換の主要素である。これに対して、散乱光は損失なく再放射される光であり、光熱変換には全く寄与しない。従って、散乱を限りなく抑制し、真の完全吸収構造を実

現できれば、従来の光熱変換デバイスの効率を2~10倍近く改善でき、エネルギー利用効率を劇的に向上できる。

FDTD 計算によれば、光吸収の寄与が大きな構造は誘電体層に電場が局在し、散乱の寄与が大きな構造は金ナノ構造体表面の空間（金属—空気界面）に電場が局在する。従ってこの金属ナノ構造体周囲の局在電場を抑制し、誘電体内部（光吸収体内部）に局在させることが真の完全光吸収体へのカギとなる。

実吸収に利用されていない光量を正確に見積もり、真の完全吸収構造を提案・実現させる道筋を明らかにすることは、光熱変換デバイスの更なる高効率化を実現する上で非常に重要であり、学術的にも大いに意義のある研究課題である。

2. 研究の目的

本研究では、1. 積分球型散乱計測システムや遠方界反射散乱計測システムを構築し、精密かつ定量的に散乱係数を評価する。2. 構築した手法に基づいて、光散乱を抑制し吸収効率を最大化できる新たなプラズモン吸収体を提案する。3. 縮小露光法に基づいた加工技術で作製と評価を行うことを目的とする。以上の研究課題を解決し、極限的な光熱変換効率を実現する真の完全光吸収体と光熱変換デバイスを構築する。

従来の先行研究で、プラズモン光吸収体の光散乱は無視できるとされてきた。しかし、研究代表者の独自の研究で、無視できない相当量の光散乱の存在が示された。光学の分野において、光散乱を評価することは一般的な評価技術であり、半導体材料の解析などにも利用されている（白崎博公、精密工学会誌 2007 年など）。実際に研究代表者も太陽電池材料として用いられるブラックシリコン材料の開発で散乱評価を導入し、光吸収率を精密に計測してきた（APL photonics, 2016 など）。前述のように金ナノ微粒子のプラズモン特性は圧倒的に光散乱が支配的である。しかし、プラズモン光吸収体では、文献調査をする限り世界中の誰も散乱を評価していない、すなわち、光吸収と光散乱が混同され精密に分離・評価されていないのが現状である。この現状に一石を投じ、緻密なシミュレーションと実験的な解析により、プラズモン光吸収体の光散乱を定量的に評価する。そのうえで、光散乱を抑制できる構造を提案し、真なる完全吸収体と極限の光熱変換効率を持つデバイスを構築することが本研究のオリジナリティである。これにより革新的光熱変換デバイスに向けた設計・評価手法を確立できる。

3. 研究の方法

時間領域差分法（FDTD 法）による電磁界シミュレーションにより、反射吸収散乱を精緻に計算した。また、自作の光学系で実験的に散乱を計測できるシステムを構築した。メタ表面材料は、電子線リソグラフィにより構築した。

4. 研究成果

FDTD 法による電磁界シミュレーションによって、散乱断面積と吸収断面積を定量的に評価する手法を確立することに成功した。積分球を使った計測から、散乱スペクトルを実際に測定することにも成功した。これにより、当初の目標であった散乱成分の存在を定量的に示すことに成功した。そこで、以降の研究では、以下に真の完全吸収を実現するかに注目して研究を行った。一つ目は吸収損失の大きな金属を使う着想で実験を行った。通常メタ表面では、金と誘電体の間にクロムやチタンを接着層として使用する。この接着層に使う金属は一般的に電気抵抗が比較的高く、低反射率・高光吸収特性を示す。そこで、この接着層として用いているクロムの膜厚を調

整すると、FDTD 計算から散乱断面積に対して吸収断面積の割合を 2 倍強まで増大させることができることを見出した。この光吸収と光散乱の特性は赤外放射効率に大きく影響する。すなわち、散乱が大きく吸収が低い構造では低反射状態でも放射効率は低い。放射スペクトルと反射スペクトルの相関を定量的に評価していくことにより、実験的にもクロムによって光吸収が促進されていることを明らかにすることができた。これは FDTD 計算の結果を良好に再現する結果が得られたと評価できる。この結果は、誘電体層に吸収材料を置くことでも真の完全吸収を実現できることを示す結果といえる。そこで、吸収性の分子を誘電体層として用いると、分子の赤外吸収とメタ表面のプラズモン共鳴との間で、光分子結合が発生し、吸収係数の増強が起こることもあきらかにした。この光-分子結合状態では、さらに誘電体層への光局在が増大して、真の完全吸収状態になっていることを見出した。最後にメタ表面を構成する材料に注目した。金、銀、銅は導電性が高く散乱の大きなプラズモン材料である。しかし、プラズモン共鳴を示しつつ吸収損失の大きな材料である白金とパラジウムを混ぜた 5 種類の金属からなるハイエントロピー合金を用いることにより、吸収が増大することを見出すことに成功した。

以上の手法により、無視できない光散乱の存在と真の完全吸収を実現する手法の確立を達成した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 0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 Nishijima Yoshiaki, To Naoki, Bal?ytis Armandas, Juodkazis Saulius	4. 巻 30
2. 論文標題 Absorption and scattering in perfect thermal radiation absorber-emitter metasurfaces	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 4058 ~ 4058
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.447885	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 Nishijima Yoshiaki, Morimoto Shinya, Bal?ytis Armandas, Hashizume Tomoki, Matsubara Ryosuke, Kubono Atsushi, To Naoki, Ryu Meguya, Morikawa Junko, Juodkazis Saulius	4. 巻 10
2. 論文標題 Coupling of molecular vibration and metasurface modes for efficient mid-infrared emission	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry C	6. 最初と最後の頁 451 ~ 462
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1TC04519A	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 Kumagai Takuhiro, To Naoki, Bal?ytis Armandas, Seniutinas Gediminas, Juodkazis Saulius, Nishijima Yoshiaki	4. 巻 11
2. 論文標題 Kirchhoff's Thermal Radiation from Lithography-Free Black Metals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Micromachines	6. 最初と最後の頁 824 ~ 824
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/mi11090824	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 Kumagai Takuhiro, To Naoki, Bal?ytis Armandas, Seniutinas Gediminas, Juodkazis Saulius, Nishijima Yoshiaki	4. 巻 11
2. 論文標題 Kirchhoff's Thermal Radiation from Lithography-Free Black Metals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Micromachines	6. 最初と最後の頁 824 ~ 824
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/mi11090824	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 Nishijima Yoshiaki、Nishijima Hiroyoshi、Juodkazis Saulius	4. 巻 217
2. 論文標題 Black silicon as a highly efficient photo-thermal converter for snow/ice melting in early spring agriculture	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Solar Energy Materials and Solar Cells	6. 最初と最後の頁 110706 ~ 110706
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.solmat.2020.110706	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0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>【プレスリリース】超狭帯域赤外放射を実現 https://www.ynu.ac.jp/hus/koho/27484/detail.html</p>
--

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