

ナノ・マイクロ構造による熱輻射制御の原理

高原 淳一

大阪大学大学院 工学研究科(〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)
大阪大学 工学研究科附属フォトリクスセンター(兼)(〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)

Principles of Thermal Radiation Control by Nano/Micro-Structures

Junichi TAKAHARA

Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871
Photonics Center, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

(Received December 20, 2022)

This paper comprehensively overviews the principles of thermal radiation control by nano/micro-structures. First, we review the history of thermal radiation control, starting from the spontaneous emission of atoms placed in a microcavity. Next we discuss the effects of a microcavity and surface waves on thermal radiation. Finally, the narrow and wideband perfect absorbers based on metamaterials/metasurfaces are discussed.

Key Words: Thermal radiation, Microcavity, Perfect absorber, Metamaterial, Super-Planckian

1. はじめに

持続可能な社会の実現に向けて、社会のあらゆる分野において省エネルギー、省資源化がすすめられている。そこで重要になるのが熱の制御である。熱はエネルギー形態の一つであるから消すことはできないが、熱伝導、熱輻射、対流によって空間を移動させる(伝熱(heat transfer)),あるいは別の形態に変換する(エネルギー変換)ことができる¹⁾。伝熱やエネルギー変換をナノテクノロジーの視点から見直すことで自在に制御できれば、省エネルギー化の飛躍的な進展が期待できる。

熱輻射はプランクの法則にしたがうブロードなスペクトル分布をもつ。これを光源としたものが白熱電球やハロゲン電球などの熱輻射光源である。現在、照明の分野では白熱電球からLEDへの置き換えがすすめられているが、熱輻射光源は効率が低いとして簡単に切り捨てるにはおしい優れた特徴を持っている。一般に熱には温度(熱力学温度 T)しかなく、光と異なりスペクトルをもたないので制御が非常に難しい。しかし、熱輻射を利用して熱を光にエネルギー変換(熱光変換)すると、光のもつスペクトルにより制御が容易になる。熱光変換により熱は「飛び道具」に化けるので、熱伝導に比べてはるかに遠方への伝熱を光速でできる²⁾。また、熱輻射のエネルギー変換効率は極めて高い。例えば、真空断熱された古いタイプの白熱電球(エジソン電球)の電力から輻射パワーへの変換効率は90%をこえる^{3,4)}。

2000年以降のナノテクノロジーの発展により熱輻射

スペクトルや偏光の制御が可能となり、この分野は熱輻射制御(thermal radiation control)とよばれるようになった^{2,3,5-7)}。ナノ・マイクロ共振器、フォトリクス結晶やメタマテリアルにより、特定の波長または帯域に熱輻射パワーを集中させることで、可視~赤外の広い波長域にわたる高効率の狭帯域熱輻射光源を実現できる。また、熱励起された表面波(surface wave)により指向性の高い単色の熱輻射が得られている⁸⁾。波長より十分小さな距離だけ離れた物体間の輻射伝熱(radiative heat transfer)がプランクの法則の限界を超えることも実証された⁹⁾。これらは半導体光源の少ない赤外~テラヘルツ域の光源、熱光起電力(thermophotovoltaic: TPV)発電や放射冷却など広い分野への応用が期待されている¹⁰⁾。

最近、遠方場においてもプランクの法則の限界を超える輻射伝熱が観測されたという報告がある¹¹⁾。これは熱力学の基本法則を破ることから、基礎的な面からその解釈をめぐる議論が続いている¹²⁾。

本稿ではチュートリアル的な観点からナノ・マイクロ構造を用いた熱輻射制御の原理について述べる。はじめにプランクの法則から熱波長を定義し、近接場と遠方場を区別する。遠方場の輻射伝熱についてマイクロ共振器中の原子の自然放出の研究から熱輻射制御にいたる歴史を概観する。共振器中の光の定在波や表面波が遠方場の熱輻射スペクトルにおよぼす効果について議論する。最後にメタマテリアルやメタサーフェスによって完全吸収体を構成するための原理の違いについて述べ、熱輻射光源の実例を紹介する。

2. キルヒホッフの法則とプランクの法則

黒体(blackbody)とはあらゆる波長の光を吸収する仮想的な物体のことをいう。現実にはこのような物体は存在しないので空洞にあけた穴が黒体として利用される(Fig. 1(a)). Fig. 1(a)では温度 T の空洞壁とそれと熱平衡状態にある空洞中の光(フォトン)を考える(空洞内は真空とする)。壁は吸収をもつ物体とする。壁に小さな穴をあけ、空洞中の光を外部に取り出したものが黒体輻射である。

キルヒホッフの法則によれば「空洞壁を構成する物体の分光発散度(分光放射能とよばれることもある)と分光吸収率の比は物体の性質によらず一定である。その比は物体と熱平衡状態にある空洞内の輻射の分光発散度に等しい」である^{1,13,14)}。これを式で書くと

$$\frac{E(\omega)d\omega}{A(\omega)} = E_{bb}(\omega)d\omega \quad (1)$$

となる。ここで、 $E(\omega)d\omega$ W/m² は角周波数 ω における空洞壁からの分光発散度、 $A(\omega)$ は壁の分光吸収率(spectral absorptivity)、 $E_{bb}(\omega)d\omega$ W/m² は空洞中の輻射の分光発散度である。量子力学によれば $E_{bb}(\omega)d\omega$ は以下のプランクの法則にしたがう。

$$E_{bb}(\omega)d\omega = \frac{\hbar}{4\pi^2c^2} \frac{\omega^3}{\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1} d\omega \quad (2)$$

ここで、 $\hbar = h/2\pi$ 、 h はプランク定数、 c は光速、 k_B はボルツマン定数である。式(2)の唯一のパラメータは T であり、それ以外は自然定数で決まるので制御できない。しかし、現実の物体表面(実在面)の熱輻射は黒体輻射からずれている。そこで黒体輻射と実在面からの分光発散度の比として分光輻射率(spectral emissivity) $\epsilon'(\omega) = E(\omega)/E_{bb}(\omega)$ を定義する(伝熱工学では輻射率を ϵ で表すが、本稿では誘電率と区別するために'をつけた)。式(1)は分光輻射率を用いると $\epsilon'(\omega) = A(\omega)$ と書ける(キルヒホッフの法則はこの形で表現されることが多い)。したがって実在面からの熱輻射スペクトルを制御するには材料や表面の状態を変えて吸収スペクトルを設計すればよい。

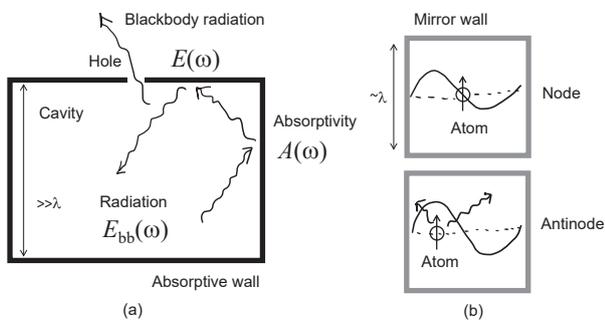


Fig. 1 (a) Blackbody radiation from a small hole on a macroscopic cavity ($\gg \lambda = 2\pi c/\omega$), and (b) spontaneous emission from a single atom inside a micro-cavity ($\sim \lambda$). The atom is placed on the node or the anti-node of a resonant mode of light.

黒体輻射はあらゆる波長の光を含む白色光で特定の波長がない。これは近接場の領域を定めるうえで問題となる。そこで黒体輻射のピーク波長を熱輻射の波長とするのが良い。式(2)を ω で微分してピーク角周波数を求め、それを波長に換算するとピーク波長 λ_{max} は、

$$\lambda_{max} \approx 2.23 \frac{\hbar c}{k_B T} = 2.23 \lambda_T \quad (3)$$

となる。ここで長さの次元を持つ量として熱波長(thermal wavelength)

$$\lambda_T = \frac{\hbar c}{k_B T} \quad (4)$$

を導入した^{2,14)}。 λ_T は黒体輻射のピーク波長とほぼ等しく、熱輻射の特性波長として用いることができる。こうすると熱輻射光源から λ_T より十分はなれた領域 ($\gg \lambda_T$) を遠方場(far field)、十分小さい領域 ($\ll \lambda_T$) を近接場(near field)として区別できる。

式(2)を全周波数において積分すると黒体の全放射発散度(全放射能ともよばれる) E_{bb} W/m² と T の関係式として以下のステファン・ボルツマンの法則が得られる^{1,14)}。

$$E_{bb} = \sigma T^4 \quad (5)$$

ここで、 $\sigma = \pi^2 k_B^4 / 60c^2 \hbar^3$ はステファン・ボルツマン定数 ($\sigma = 5.67 \times 10^{-8}$ Wm⁻²K⁻⁴) である。

いま平板の黒体1と黒体2が距離 d だけ離れて平行に向き合っているとする。 λ_T に比べて十分離れた遠方場 ($d \gg \lambda_T$) にある2つの黒体1(温度 T_1)と黒体2(温度 T_2)の間の正味の輻射伝熱は $E_{net} = \sigma(T_1^4 - T_2^4)$ で与えられ、この黒体輻射の値を超えることはできない。伝熱工学の視点から式(5)の E_{bb} は遠方場で T において熱輻射により取り出し可能な最大のエネルギー束を与える。近接場 ($d \ll \lambda_T$) では2つの黒体間でエバネッセント波(トンネリングフォトンと解釈できる)による伝熱がおきるから、その寄与を考慮する必要がある。黒体表面のエバネッセント波の平行方向の最大波数をカットオフ波数 β_c とおくと輻射伝熱におけるエネルギー束のエバネッセント波の寄与分 E_{bb}^{eva} は

$$E_{bb}^{eva} = \frac{k_B^2 T^2 \beta_c^2}{24\hbar} \quad (6)$$

と書ける¹⁵⁾。カットオフ波数を波長に換算して $\lambda_c = 2\pi/\beta_c$ とおき、式(6)と式(5)の比をとると伝搬波に対するエバネッセント波の寄与の割合は

$$\frac{E_{bb}^{eva}}{E_{bb}} = 10 \left(\frac{\lambda_T}{\lambda_c} \right)^2 \quad (7)$$

となる。Fig. 2 から λ_T は温度にもよるがおおむねオーダー $10^{-6} \sim 10^{-3}$ m 程度である。具体例として例えば SPP (Surface Plasmon Polariton) の取りうる最小波長のオーダー $\lambda_c \sim 10^{-8}$ m とすれば式(7)は 10^5 以上の値となる。近接場輻射伝熱においてエバネッセント波の寄与は伝搬

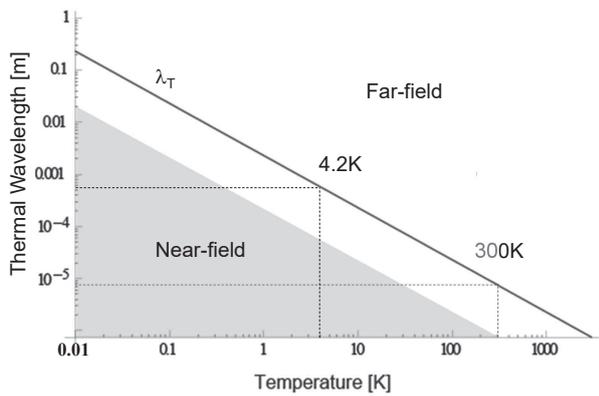


Fig. 2 Thermal wavelength vs. temperature: Gray area is the region which is one order shorter than λ_T .

波に比べて桁違いに大きく、輻射伝熱はステファン・ボルツマンの法則の限界 E_{bb} を大きく超える。これをスーパープランキアン (super-Planckian) とよぶ。この現象は近接場輻射伝熱と呼ばれている。

Fig. 2 に λ_T の温度依存性を示す¹⁴⁾。灰色は熱波長より一桁小さい $\lambda_T/10$ 以下の領域を示し、近接場の目安となる。室温 300 K では $\lambda_T \sim 10 \mu\text{m}$ であり、近接場は $1 \mu\text{m}$ 以下のサブミクロン空間以下であるからマクロな系は遠方場として扱うことができる。しかし、微細化が著しい電子集積回路では近接場輻射伝熱を考慮する必要がある。液体 He 温度 (4.2 K) では $\lambda_T \sim 1 \text{mm}$ であり、 $100 \mu\text{m}$ の距離でも近接場に入り、さらに極低温においては $\lambda_T \sim \text{cm}$ となるからマクロな系でも近接場輻射伝熱を扱う必要がある。

3. 共振器 QED から熱輻射制御へ

孤立原子からの自然放射 (spontaneous emission) はその原子に備わった自然の性質と考えられていた。しかし、Purcell は原子からの自然放射はその原子の置かれた外部環境 (共振器) により変化することを指摘した¹⁶⁾。特に原子の置かれた空間のサイズが光の波長 λ 程度になると、空間が共振器となるために自由空間中の原子と比較して自然放射が抑制 (自然放射レートの低下) されたり、逆に増幅 (自然放射レートの増大) されたりする (Fig. 1 (b))¹⁷⁻¹⁹⁾。単一原子からの放射の場合はこの効果は共振器量子電気力学 (QED) 効果として知られている。これは単に共振器中の電磁場の共振モードの励起だけではないおもしろさを含んでいる。この現象が興味深いのは、光 (フォトン) の放出が起きる前の状態 (光子数ゼロ) では、励起原子は共振器の存在を認識できないにもかかわらず、共振器を感じて放射レートを調整しているように見えることである。これは光子数ゼロでも共振器中にはフォトンのゼロ点エネルギーによる真空場ゆらぎ (vacuum field fluctuation) が存在し、励起原子がこれを感じるためと解釈される²⁰⁾。

1980 ~ 90 年代にかけて自然放射は原子と真空場の結合系の性質であることが広く認識され、単一原子だけでなく、有機分子や半導体においても発光寿命の変化が観

測された。また、この効果が半導体レーザー (LD) や LED の性能向上、特にレーザー発振閾値の低減に応用できることが指摘され、応用研究が活発化した²¹⁾。1990 年代以降の半導体微細加工技術の発展により共振器の Q 値はフォトニック結晶 (Photonic Crystal: PC) 中のナノ光共振器により極めて高いものが実現され、閾値の低減が実証されている^{20,22)}。最近、プラズモニックナノレーザーにおいてもナノ光共振器による大幅な閾値低下が観測された²³⁾。

熱輻射も自然放射の一つであるから、共振器で制御できると考えるのは自然であろう。熱輻射制御に用いられる構造の例を Fig. 3 に示す。1986 年には Fig. 3 (a) に示すような深い回折格子を固体表面に形成することにより、回折格子の溝が開口型共振器となって熱輻射スペクトルが共振的に増大することが観測された²⁴⁾。これはマイクロ共振器による熱輻射制御の最初の例である。また、マイクロ共振器の赤外線カットオフ効果を利用したフィラメントによる白熱電球の高効率化のアイデアもこの時期に提案されている²⁵⁾。2000 年代に入ると 2 次元に並べたマイクロ共振器 (Fig. 3 (b)) による熱輻射制御の実験が多数行われ、熱輻射が制御できることが確認された²⁶⁻²⁹⁾。これらの構造は現在から見ると後述するメタサーフェスの一種といえるが、当時はマイクロ共振器アレイ (Micro-Cavity Array: MCA) とよばれていた。

MCA 中の光のモードは離散的にはなるが完全にモードがなくなるわけではない。共振器 QED の視点から PC の完全フォトニックバンドギャップ (Photonic Band Gap: PBG) を用いると熱輻射を完全に抑制できると期待された。MCA に続いて、Fig. 3 (c) に示す 3 次元 PC (ウッドパイル構造) や 1 次元 PC (多層膜) を加熱して熱輻射を観測する実験が多数行われた³⁰⁻³⁴⁾。その結果、完全 PBG 波長内では熱輻射の抑制が確認できたが、バンド端において状態密度の増大により熱輻射が増大することがわかった。以上のように 2000 年代を通じて様々なナノ・マイクロ構造により熱輻射制御が実証されている。2011 年までの MCA と PC の構造体は系統的にまとめられた文献を参照のこと⁷⁾。

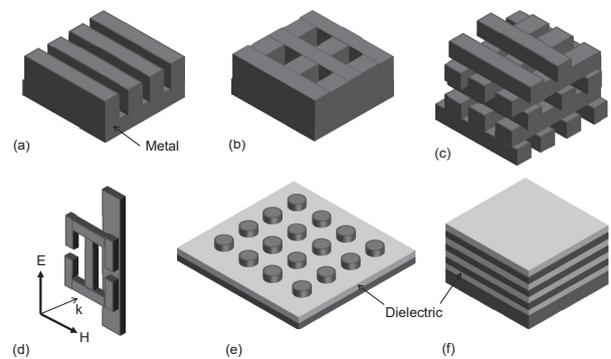


Fig. 3 Nano/micro-structures for thermal radiation control: (a) 1D MCA (deep grating), (b) 2D MCA, (c) PC, (d) a single meta-atom of the first metamaterial PA, (e) plasmonic metasurface PA composed of cylindrical MDM meta-atoms, and (f) HMM (metal/dielectric multilayers).

4. マイクロ共振器, 表面波による熱輻射制御

MCA を加熱するとどのような熱輻射スペクトルとなるか実験をみてみよう。熱輻射制御用の MCA は高温に耐えて光を強く閉じ込めるため高融点金属で作製される。MCA 構造の模式図を Fig. 4(a) に示す。これは金属表面に直方体の穴(一辺 a , 深さ h , 周期 P)を周期的にあけたものである。タンタル(Ta)基板の表面を平らに研磨し、電子ビーム露光とドライエッチングにより直方体型の MCA を作製した²⁷⁾。ここでは共振器の開口面積が単位格子中に占める割合が大きいもの($a = 5.5 \mu\text{m}$, $h = 3.2 \mu\text{m}$, $P = 7.5 \mu\text{m}$)と小さいもの($a = 2.5 \mu\text{m}$, $h = 3.2 \mu\text{m}$, $P = 5 \mu\text{m}$)の 2 種類を作製した。開口部の割合はそれぞれ 54%, 25% である。Fig. 4(b) および(c) に作製した構造の SEM 像を示す。

基板は真空容器中で 750 K に通電加熱し、FT-IR により熱輻射スペクトルを計測した。また、MCA を形成していない平面基板のスペクトルも同一温度で計測し、MCA との比をとったものを相対輻射率(relative emissivity)として Fig. 4(d), (e) に示す。まず相対輻射率 >1 であり 1 を超えていることに注意してほしい。これは平面基板より熱輻射が増大していることを示すが、なぜ共振器 QED による抑制が起きないのだろうか? 答えは簡単で、同一温度で計測しているためである。MCA 基板は平面基板と比べて輻射率が増大しているから、一種の放射冷却がおきて温度が上がりにくく、同じ温度にするため MCA 基板に入力電力を多く投入している。実際、加熱の電力を同一にして実験を行うと、相対輻射率 <1 となって熱輻射の抑制を実験的に観測できる³⁾。

Fig. 4(d), (e) からスペクトルは開口の割合に依存して大きく異なることがわかる。開口が大きい場合は

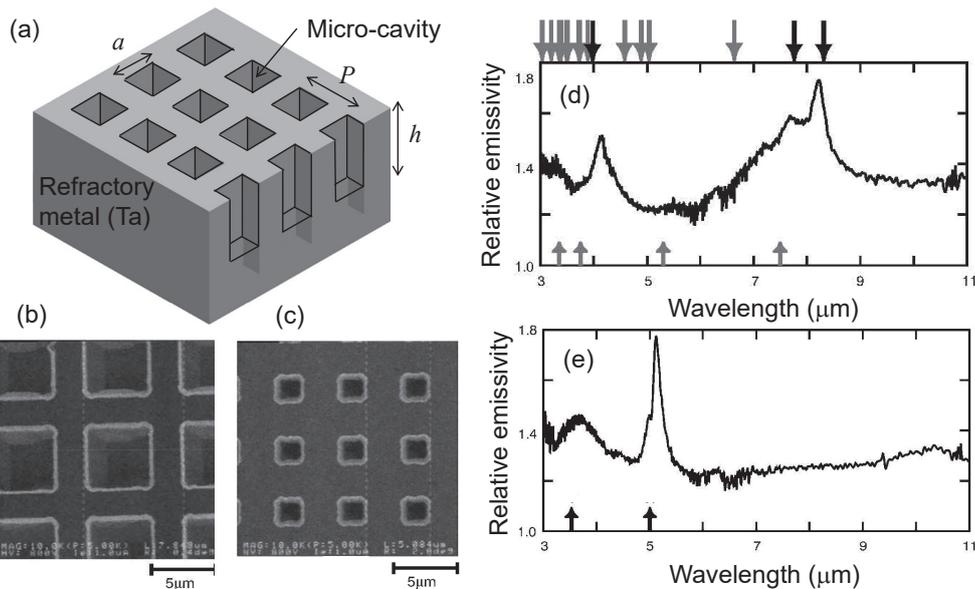


Fig. 4 Thermal radiation from MCAs: (a) schematic of MCA, (b) SEM image of sample A: $a = 5.5 \mu\text{m}$, $h = 3.2 \mu\text{m}$, $P = 7.5 \mu\text{m}$, (c) SEM image of sample B: $a = 2.5 \mu\text{m}$, $h = 3.2 \mu\text{m}$, $P = 5 \mu\text{m}$, and relative emissivity spectra of (d) sample A and (e) sample B at 750 K. Up and down arrows in (d) and (e) indicate theoretical wavelengths of SPP resonance and open-end micro-cavity resonance, respectively. (Reprinted with modified in permission from F. Kusunoki, J. Takahara, and T. Kobayashi: Electronics Lett. **39** (2003) 23).²⁷⁾

Fig. 4(d) に示すように多数のブロードなピークが観測される。矢印は直方体のマイクロ共振器中の共振波長の理論値であり、実験とよく一致している²⁷⁾。したがって共振モードのうち外部の放射場と結合できるモードによる熱輻射の増大がおきたといえる。一方、開口の割合が小さくなり側壁部分が大きくなると、壁面上に熱励起された表面波である表面プラズモンポラリトン(Surface Plasmon Polariton: SPP)の効果が現れる。SPP の分散曲線は SPP 共振周波数において大きな波数の発散を引き起こす。これは状態密度の発散を意味するから、熱輻射の励起の大部分は MCA の共振モードではなく SPP に集中する。

真空・金属(負誘電体)の界面を伝搬する SPP の波数 β は

$$\beta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_m}{1 + \epsilon_m}} \quad (8)$$

で与えられる³⁵⁾。ここで、 ϵ_m は金属の比誘電率(<0)である。いま x - y 方向の周期がそれぞれ L_x , L_y の二次元 MCA を考える。表面に熱励起された SPP は以下の波数整合条件が満たされる方向の伝搬光と結合し、遠方場に輻射される²⁷⁾。

$$k_{ij} = \beta + mg_x + ng_y \quad (9)$$

ここで、 k_{ij} は輻射伝搬光の波数ベクトルの表面への射影ベクトル、 β は(8)式で与えられる SPP の波数ベクトル、 g_x , g_y はそれぞれ MCA を回折格子とみたときの x 軸、 y 軸方向の逆格子ベクトルで $|g_x| = 2\pi/L_x$, $|g_y| = 2\pi/L_y$, m, n は整数($m, n = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots$)、である。Fig. 4(e) に観測される狭帯域ピークの波長は(8)式、(9)式と $(m, n) = (1, 0), (0, 1), (1, 1)$ において良く一致することから、回

折格子を介して熱励起された SPP が遠方場へ輻射されることがわかる。

以上より MCA の熱輻射制御においては表面波も含めたあらゆる励起モードを考慮する必要があることがわかる。特に共振器の深さが波長に比べて浅い場合には、表面波の効果がさらに顕著に表れる。シリコンカーバイド (SiC) の表面に形成した浅い回折格子において表面波による指向性の高い熱輻射が報告されている⁸⁾。これは高温においても表面波の位相が数周期にわたって保持されていることを意味している。ただし、この表面波は SiC の Reststrahlen バンドに起因するフォノン由来の負誘電体によるものであり、表面波は表面フォノンポラリトン (Surface Phonon Polariton: SPhP) である。SPhP は近年フォノンクスにおいてナノ領域の熱伝導を増大させることから注目を集めている³⁶⁾。

MCA や PC においてはナノ構造の壁の表面からの輻射が残るため、輻射率を $\epsilon'(\omega) = 0$ にすることは困難である。2000 年代の研究でわかったことは、共振器 QED 効果による熱輻射抑制よりはむしろ金属基板を用いて背景輻射を抑制しながら、必要な周波数において完全吸収 ($A(\omega) = 1$) を実現する方が容易であり、応用上の効果は同じであるという点である。エネルギー保存則から自明であるが、入力電力一定の条件下では輻射率を最大化すると、それ以外の輻射は抑制されるからである。そこで以下では完全吸収体について述べる。

5. 完全吸収体とメタマテリアル

完全吸収体 (Perfect Absorber: PA) とはある特定の周波数の光の吸収率 = 1 である物体のことであり、2 節で述べた黒体とは異なる。いま真空中に置いた複素屈折率 $n' = n - i\kappa$ (n は屈折率、 κ は消衰係数) の均一な薄膜を考えると、これに角周波数 ω の光を垂直入射する。薄膜表面には凹凸はなく、フラットであるとする。このとき薄膜の垂直反射率 $R(\omega)$ 、透過率 $T(\omega)$ 、吸収率 $A(\omega)$ とすると $R(\omega) + T(\omega) + A(\omega) = 1$ である。ただし、もし薄膜に周期構造や平面内の不均一性などがあると、回折や散乱により反射・透過に斜め成分が出る。この場合は反射率と透過率を半球面において角度積分して再定義する必要がある。

PA は $A(\omega) = 1$ であるから $R(\omega) + T(\omega) = 0$ より、PA は ω において無反射 ($R(\omega) = 0$) かつ不透明 ($T(\omega) = 0$) でなければならない。薄膜を金属基板上に形成すると不透明となるから PA は無反射にするだけでよい。金属基板を用いた PA はステルス技術としての長い歴史があり、 $\lambda/4$ 無反射膜を用いた Salisbury スクリーンが知られている²⁾。これは破壊的干渉効果を利用して無反射を実現した例である。

2008 年にはメタマテリアル (metamaterial) を用いた新しい原理の PA が提案、実証された。この方法はインピーダンス整合により無反射を実現する³⁷⁻³⁹⁾。メタマテリアルはメタ原子とよばれる波長 λ より十分小さな人工共振器 ($\ll \lambda$) を多数並べたものであり、光に対しては有効

屈折率をもつ有効媒質としてふるまう^{40,41)}。メタマテリアルの波動インピーダンス η は以下のようにあらわされる。

$$\eta(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_{\text{eff}}(\omega)}{\epsilon_{\text{eff}}(\omega)}} Z_0 \quad (10)$$

ここで、 $\epsilon_{\text{eff}}(\omega)$ 、 $\mu_{\text{eff}}(\omega)$ はそれぞれメタマテリアルの有効比誘電率、有効比透磁率 $Z_0 = \sqrt{\mu_0/\epsilon_0} \sim 377 \Omega$ は真空の波動インピーダンス、 ϵ_0 は真空の誘電率 ($8.854 \times 10^{-12} \text{ F/m}$)、 μ_0 は真空の透磁率 ($4\pi \times 10^{-7} \text{ H/m}$) である。天然の材料では赤外～可視域では比透磁率 $\mu_r = 1$ であるから、様々な値をとる比誘電率 ϵ_r との整合をとることは難しい。メタマテリアルを用いるとメタ原子の構造を変えることで $\epsilon_{\text{eff}}(\omega)$ と $\mu_{\text{eff}}(\omega)$ を独立に設計できるので、 $\epsilon_{\text{eff}}(\omega) = \mu_{\text{eff}}(\omega)$ とすることができる。これにより真空とのインピーダンス整合がとれ無反射を実現できる。

Fig. 3(d) にメタマテリアル PA のメタ原子を示す³⁸⁾。ここでメタ原子は電気リング共振器と金属線から構成される。Fig. 3(d) に示す向きで直線偏光を入射するとリング共振器が電気共振を、リング共振器と金属線との間に変位電流による磁気共振を示す。サイズパラメータを変化させインピーダンス整合をとり、同時に共振による損失増大により透過を抑制する。これによりマイクロ波 11.5 GHz ($\lambda = 26 \text{ mm}$) において波長に比べて十分薄い $750 \mu\text{m}$ ($\lambda/35$) 厚の狭帯域 PA ($A = 0.88$) を実現した。ただし、単層では 1% 程度の透過率があるので、複数層重ねることで波長以下の厚さの PA ($A = 1$) となる。同様の原理でテラヘルツ波 1.6 THz ($\lambda = 190 \mu\text{m}$) や中赤外光 ($\lambda = 6 \sim 8 \mu\text{m}$) の PA も実現された^{42,43)}。

6. メタマテリアル/メタサーフェス完全吸収体による熱輻射制御

PA で熱輻射制御を行うにはこれを加熱する必要がある。5 節に述べたメタマテリアルの 3 次元構造は作製が困難で、材料も高温動作に向いていない。このため赤外～可視域では 2 次元メタマテリアルであるメタサーフェス (metasurface) を用いる方が良い。

メタサーフェスの PA の実現のためには、単一のメタ原子 (プラズモニック共振器) の吸収断面積 C_{abs} が共振周波数において幾何学的断面積 S より非常に大きくなる現象 ($C_{\text{abs}} \gg S$) を利用する^{2,35)}。MDM パッチ型メタ原子を例にとり、原理を Fig. 5 に模式的に示す²⁾。Fig. 5(a) に示すように共振周波数においてメタ原子は漏斗のように光を集めて吸収する機能をもつ。光のポインティングベクトルがメタ原子に吸い込まれる様子がシミュレーションにより得られている^{44,45)}。このようなメタ原子を多数用意して、共振条件の C_{abs} の面積をもつ円が互いに重なるように平面に並べると入射するすべての光子を吸収する PA になると予測できる (Fig. 5(b))。

キルヒホッフの法則から Fig. 5(a) の系はスーパープランキアンでもある¹²⁾。最近、波長以下の単一のナノ物体が遠方場でスーパープランキアンになることが観測

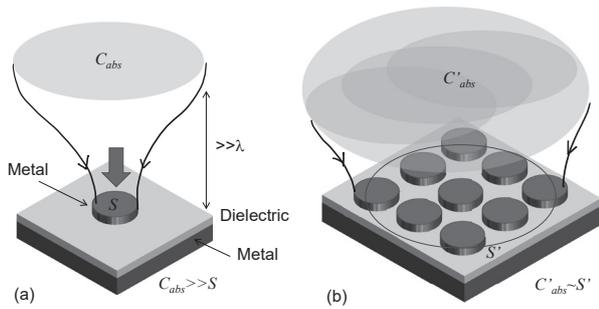


Fig. 5 Schematic principles of PA by metasurface at far-field: absorption cross-sections by (a) a single meta-atom and (b) a super-cell of meta-atoms. (a) a plasmonic meta-atom (an MDM patch nanodisk) is irradiated by light at resonant wavelength with $C_{abs} \gg S$. (b) multiple meta-atoms of (a) are arranged in a super-cell where C_{abs} is overlapped each other with $C'_{abs} \sim S'$.

されている⁴⁶⁾。しかし、Fig. 5(a)を多数集めてスーパーセル化し、熱平衡状態に置いた系の吸収断面積 C'_{abs} はスーパーセルの幾何学的面積 S' とほぼ等しくなり、それを超えることはない (C_{abs} の円の重なり領域でフォトンが2倍吸収されるわけではなく、どちらかのメタ原子に吸収されるため)。Fig. 5(b)にキルヒホッフの法則を適用して輻射とみれば、熱平衡状態にあるスーパーセルからの熱輻射がスーパープランクアンではなく黒体輻射になることが直観的にもわかる¹²⁾。

Fig. 3(e)にメタサーフェスによるPAの構造例を示す。これはメタ原子として金属・誘電体・金属(Metal-Dielectric-Metal: MDM)構造のパッチ型プラズモニック共振器を用いたメタサーフェスである⁴⁷⁻⁵⁰⁾。このプラズモニック共振器はSPPに対する横型のファブリペロー(Fabry-Pérot: FP)共振器であり、外部光を出し入れる光アンテナでもある。この共振モードをギャップ表面プラズモン(Gap Surface Plasmon: GSP)とよぶ⁴⁹⁾。ギャップ間距離を波長より小さくするとGSPの伝搬損失が大きくなり、光アンテナに捕獲された光は吸収され熱になる(光熱変換)。

2008年にMDM構造を持つメタサーフェス型PAが狭帯域熱輻射エミッターにはじめて利用された^{50,51)}。2010年代に入るとMDM構造をベースとした狭帯域中赤外光源が多数報告されるようになった⁵²⁻⁵⁴⁾。ガスセンシング応用のため二つの指紋波長を同時に輻射できる中赤外光源が実現されている^{55,56)}。最近では1 m²の面積中赤外光源も作製されている⁵⁷⁾。

近年では高い融点と貴金属に近い負誘電率を兼ね備えた窒化物セラミクス(TiN, HfNなど)が高融点プラズモニック材料(refractory plasmonic material)として登場したことで、貴金属が中心のプラズモニックで培われた成果を熱輻射光源に応用できるようになった。Fig. 6(a)にHfNを用いたメタサーフェスPAからの熱輻射の実験例を示す⁴⁾。これはHfNを金属層、SiO₂を誘電体層として用いたMDM型メタサーフェスである(Fig. 6(b))。Fig. 6(c)に温度573 Kにおける熱輻射スペクトルを示す。

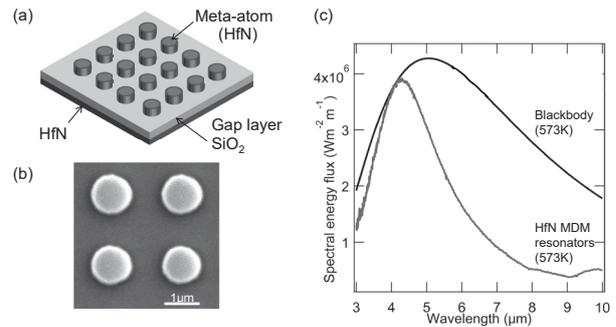


Fig. 6 Thermal radiation from refractory plasmonic metasurface: (a) schematic of MDM metasurface consisting of HfN and SiO₂ and (b) SEM image of top view of HfN meta-atoms, (c) thermal radiation spectra at 573 K from metasurface (experiment) and blackbody (calculation). (Reprinted with modified from H. Toyoda, K. Kimino, A. Kawano, and J. Takahara: *Photonics* 6 (2019) 105.⁴⁾

中赤外(波長4.2 μm)において0.99を超える高い輻射率が得られている。また、同一温度の黒体輻射と比較すると、黒体であれば輻射されるはずの長波長側の輻射が抑制されている。このようにPAにより特定波長の熱輻射のみを黒体レベルまで最大化できることが現在の熱輻射制御の特徴である。

メタサーフェス型PAの利点はメタ原子のサイズを変更するだけで可視域から赤外域まで輻射ピーク波長を幅広く変えることができる点である。このときQ値を上げることにより単色性を高めたいが、MDM型メタ原子のQ値は1~10のオーダーでありそれほど高くできない。Q値の高い狭帯域赤外光源としてSPP, SPhP, 疑似表面プラズモン等の表面波を利用したものがある^{27,8,58)}。しかし、表面波を輻射として取り出すには4節に述べた回折格子による波数整合を必要とするから、角度依存性が強い。高いQ値を持つものとしてPCとサブバンド間吸収を制御した半導体赤外光源や、Tammプラズモンを用いた角度依存性の少ない狭帯域赤外光源などが報告されている^{59,60)}。最近、機械学習による金属基板上的誘電体多層膜の構造最適化により極めて高いQ~200をもつ狭帯域赤外光源が実現された⁶¹⁾。

廃熱回収や放射冷却などへの応用のためには、狭帯域化よりもむしろ広帯域化が重要である。これにはFig. 3(f)に示すハイパボリック・メタマテリアル(Hyperbolic Metamaterial: HMM)を用いたPAが注目されている⁶²⁾。HMMは金属(負誘電体)と誘電体の多層膜($\ll \lambda$)により実現される有効媒質でありユニークな分散関係を示すことで知られている(金属ロッドアレイもあるがここでは取り上げない)⁶³⁾。光の分散関係は誘電体媒質中では波数空間(k空間)において球面であるが、HMMでは双曲面(hyperboloid)となることからこの名前が付いた。HMMの大きな特徴はバルク伝搬波(Bulk Propagating Wave: BPW)とよばれるSPPに起源をもつ波がバルク中を伝搬できることである⁶⁴⁾。BPWの波数はk空間の双曲面では波数の上限がなくなるため、(無損失の場合には) $k = \infty$ にできる。このためHMMをメタ原子とする場

合には、外部からどんな角度で入射光 k が入射しても BPW が励起され、SPP 由来の高い吸収率で直ちに吸収されることを意味する。SPP も $k = \infty$ の領域で損失が極めて大きくなるが、表面波のため結合は容易ではない。HMM は SPP と誘電体中のバルク波の良い点を兼ね備えており回折限界の制約を受けないので、もし損失の大きさを軽減することができれば、将来的には輻射制御にとどまらずナノ光集積回路などへの展開が期待できる^{64,65)}。

7. まとめ

ナノ・マイクロ構造による熱輻射制御の原理を俯瞰的に紹介した。MCA や PC をはじめとしてメタマテリアル、メタサーフェスによる遠方場での熱輻射スペクトル制御が既に実現されている。また近年、熱伝導においてもフォノン結晶によって熱の流れをフォノンとして制御できるようになった⁶⁶⁾。このようにナノ領域の熱の制御はフォトンクスとフォノンクスが融合する時代に入りつつある。遠方場にとどまらず、表面波や近接場輻射伝熱を積極的に活用して、TPV 発電、廃熱回収や放射冷却などへの応用をすすめることにより持続可能な社会へ貢献することが我々に求められている。

参考文献

- 1) JSME: Heat Transfer (JSME Textbook Series) (Maruzen, 2005) Ch. 4 (in Japanese).
日本機械学会：伝熱工学 (JSME テキストシリーズ) (丸善, 2005) Ch.4.
- 2) J. Takahara: KOGAKU **47** (2018) 358 (in Japanese).
高原 淳一：光学 **47** (2018) 358.
- 3) J. Takahara, Y. Ueba, and T. Nagatsuma: KOGAKU **39** (2010) 482 (in Japanese).
高原 淳一, 上羽 陽介, 永妻 忠夫：光学 **39** (2010) 482.
- 4) H. Toyoda, K. Kimino, A. Kawano, and J. Takahara: Photonics **6** (2019) 105.
- 5) D. G. Baranov, Y. Xiao, I. A. Nechepurenko, A. Krasnok, A. Alù and M. A. Kats: Nature Mat. **18** (2019) 920.
- 6) *Nano/Microscale Thermophysical Properties Handbook, JSTP (ed.)* (Yokendo, 2014) Sec. 3.4 (in Japanese).
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) 3.4 節.
- 7) *Nano/Microscale Thermophysical Properties Handbook, JSTP (ed.)* (Yokendo, 2014) Sec. 6.5 (in Japanese).
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) 6.5 節.
- 8) J.-J. Greffet, R. Carminati, K. Joulain, J.-P. Mulet, S. Mainguy, and Y. Chen: Nature **416** (2002) 61.
- 9) E. Rousseau, A. Siria, G. Jourdan, S. Volz, F. Comin, J. Chevrier, and J.-J. Greffet: Nat. Photonics **3** (2009) 514.
- 10) B. Song, D. Thompson, A. Fiorino, Y. Ganjeh, P. Reddy, and E. Meyhofer: Nat. Nanotech. **11** (2016) 509.
- 11) S.-Y. Lin, M.-L. Hsieh, S. John, B. Frey, J. A. Bur, T.-S. Luk, X. Wang, and S. Narayanan: Sci. Rep. **10** (2020) 5209.
- 12) Y. Xiao, M. Sheldon, and M. A. Kats: Nature Photon. **16** (2022) 397.
- 13) M. Planck: *Vorlesungen über die Theorie der Wärmestrahlung* (Johann Ambrosius Barth, 1906) (in Japanese).
M. Planck: 熱放射理論の講義 (若野省己訳) (丸善出版, 2021).
- 14) *Nano/Microscale Thermophysical Properties Handbook, JSTP (ed.)* (Yokendo, 2014) Sec. 2.3 (in Japanese).
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) 2.3 節.
- 15) A. I. Volokitin and B. N. J. Persson: Rev. Mod. Phys. **79** (2007) 1291.
- 16) E. M. Purcell: Phys. Rev. **69** (1946) 681.
- 17) R. G. Hulet, E. S. Hilfer, and D. Kleppner: Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 2137.
- 18) D. J. Heinzen, J. J. Childs, J. E. Thomas, and M. S. Feld: Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 1320.
- 19) E. Hanamura: Quantum Optics (Iwanami Shoten, Publishers, 1992) Ch.2 (in Japanese).
花村 榮一：量子光学 (岩波書店, 1992 年) 2 章.
- 20) E. Hanamura and M. Yamanishi: *Sel. Papers in Physics IX, Quantum Manipulation of Radiation Field and Matter* (JPS, 1997) p. 12 (in Japanese).
花村 榮一, 山西 正道：物理学論文選集 IX 輻射場と粒子の量子制御 (日本物理学会編, 1997) p. 12.
- 21) T. Kobayashi, T. Segawa, A. Morimoto, and T. Sueta: Extended Abstracts of 4th JSAP Annual Meeting (1982) p. 127 (in Japanese).
小林 哲朗, 瀬川 太郎, 森本 朗裕, 末田 正：第 4 回応用物理学会学術講演会予稿集 (1982) p. 127.
- 22) E. Dimopoulos, A. Sakanas, A. Marchevsky, M. Xiong, Y. Yu, E. Semenova, J. Mørk, and K. Yvind: Laser Photonics Rev. **16** (2022) 220010.
- 23) R.-M. Ma and S. Y. Wang: Nanophotonics **10** (2021) 3623.
- 24) P. J. Hesketh, J. N. Zemel, and B. Gebhart: Nature **324** (1986) 549.
- 25) J. F. Waymouth: J. Illum. Engng. Jpn. **74** (1990) 800 (in Japanese).
J. F. Waymouth: 照明学会誌 **74** (1990) 800.
- 26) S. Maruyama, T. Kashiwa, H. Yugami, and M. Esashi: Appl. Phys. Lett. **79** (2001) 1393.
- 27) F. Kusunoki, J. Takahara, and T. Kobayashi: Electron. Lett. **39** (2003) 23.
- 28) H. Sai, Y. Kanamori, and H. Yugami: Appl. Phys. Lett. **82** (2003) 1685.
- 29) F. Kusunoki, J. Takahara, and T. Kobayashi: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 5253.
- 30) S. Y. Li, J. G. Fleming, E. Chow, Jim Bur, K. K. Choi, and A. Goldberg: Phys. Rev. B **62** (2000) R2243.
- 31) J. G. Fleming, S. Y. Lin, I. El-Kady, R. Biswas, and K. M. Ho: Nature **417** (2002) 52.
- 32) S. Y. Lin, J. Moreno, and J. G. Fleming: Appl. Phys. Lett. **83** (2003) 380.
- 33) P. Nagpal, S. E. Han, A. Stein, and D. J. Norris: Nano Lett. **8** (2008) 3238.
- 34) O. Ilic, P. Bermel, G. Chen, J. D. Joannopoulos, I. Celanovic, and M. Soljačić: Nat. Nanotech. **11** (2016) 320.
- 35) T. Okamoto and K. Kajikawa: *Plasmonics* (Kodansya, 2010) (in Japanese).
岡本 隆之, 梶川 浩太郎：プラズモニクス～基礎と応用 (講談社, 2010).
- 36) Y. Wu, J. Ordonez-Miranda, S. Gluchko, R. Anufriev, D. De Sousa Meneses, L. Del Campo, S. Volz, and M. Nomura: Sci. Adv. **6** (2020) eabb4461.
- 37) C. M. Watts, X. Liu, and W. J. Padilla: Adv. Mater. **24** (2012) OP98.
- 38) N. I. Landy, S. Sajuyigbe, J. J. Mock, D. R. Smith, and W. J. Padilla: Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 207402.
- 39) H. Tao, C. M. Bingham, A. C. Strikwerda, D. Pilon, D. Shrekenhamer, N. I. Landy, K. Fan, X. Zhang, W. J. Padilla, and R. D. Averitt: Phys. Rev. B **78** (2008) 241103(R).
- 40) T. Ishihara: *Technologies and Applications of Metamaterial* (CMC Books, 2007) (in Japanese).
石原 照也監修：メタマテリアル～最新技術と応用～ (普及版 メタマテリアルの技術と応用) (2007, CMC 出版).
- 41) J. Takahara: *Metamaterial and metasurface design, manufacturing and application technologies* (R&D Support Center, 2020) Ch. 1 (in Japanese).
高原 淳一：メタマテリアル, メタサーフェスの設計・作製と応用技術 (R&D 支援センター, 2020) Ch. 1.
- 42) X. Liu, T. Tyler, T. Starr, A. F. Starr, N. M. Jokerst, and W. J. Padilla: Phys. Rev. Lett. **107** (2011) 045901.
- 43) B. J. Lee, L. P. Wang, and Z. M. Zhang: Opt. Express **16** (2008) 11328.
- 44) S. D. Rezaei, J. Ho, R. J. H. Ng, S. Ramakrishna, and J. K. W. Yang: Opt. Express **25** (2017) 27652.

- 45) M. F. Hainey, Jr., T. Mano, T. Kasaya, T. Ochiai, H. Osato, K. Watanabe, Y. Sugimoto, T. Kawazu, Y. Arai, A. Shigetou, *et al.*: *Nanophotonics* **9** (2020) 4775.
- 46) D. Thompson, L. Zhu, R. Mittapally, S. Sadat, Z. Xing, P. McArdle, M. M. Qazilbash, P. Reddy, and E. Meyhofer: *Nature* **561** (2018) 216.
- 47) J. Hao, J. Wang, X. Liu, W. J. Padilla, L. Zhou, and M. Qiu: *Appl. Phys. Lett.* **96** (2010) 251104.
- 48) M. G. Nielsen, D. K. Gramotnev, A. Pors, O. Albrektsen, and S. I. Bozhevolnyi: *Opt. Express* **19** (2011) 19310.
- 49) M. G. Nielsen, A. Pors, O. Albrektsen, and S. I. Bozhevolnyi: *Opt. Express* **20** (2012) 13311.
- 50) B. J. Lee, L. P. Wang, and Z. M. Zhang: *Opt. Express* **16** (2008) 11328.
- 51) I. Puscau and W. L. Schaich: *Appl. Phys. Lett.* **92** (2008) 233102.
- 52) Y. Ueba and J. Takahara: *Appl. Phys. Express* **5** (2012) 122001-1.
- 53) K. Ito, H. Toshiyoshi, and H. Iizuka: *Opt. Express* **24** (2016) 12803.
- 54) T. Yokoyama, T. D. Dao, K. Chen, S. Ishii, R. P. Sugavaneshwar, M. Kitajima, and T. Nagao: *Adv. Opt. Mat.* **4** (2016) 1987.
- 55) H. T. Miyazaki, T. Kasaya, M. Iwanaga, B. Choi, Y. Sugimoto, and K. Sakoda: *Appl. Phys. Lett.* **105** (2014) 121107.
- 56) H. Miyazaki and M. Iwanaga: *Rev. Laser Eng.* **44** (2016) 10 (in Japanese).
宮崎 英樹, 岩長 祐伸: *レーザー研究* **44** (2016) 10.
- 57) Y. Matsuno and A. Sakurai: *Opt. Mat. Express* **7** (2017) 618.
- 58) Y. Ueba, J. Takahara, and T. Nagatsuma: *Opt. Lett.* **36** (2011) 909.
- 59) M. De Zoysa, T. Asano, K. Mochizuki, A. Oskooi, T. Inoue, and S. Noda: *Nat. Photonics* **6** (2012) 535.
- 60) Z. Y. Yang, S. Ishii, T. Yokoyama, T. D. Dao, M.-G. Sun, T. Nagao, and K.-P. Chen: *Opt. Lett.* **41** (2016) 4453.
- 61) A. Sakurai, K. Yada, T. Simomura, S. Ju, M. Kashiwagi, H. Okada, T. Nagao, K. Tsuda, and J. Shiomi: *ACS Cent. Sci.* **5** (2019) 319.
- 62) M. M. Hossain, B. Jia, and M. Gu: *Adv. Opt. Mater.* **3** (2015) 1047.
- 63) A. Poddubny, I. Iorsh, P. Belov, and Y. Kivshar: *Nat. Photonics* **7** (2013) 948.
- 64) M. Higuchi and J. Takahara: *Opt. Express* **26** (2018) 1918.
- 65) O. Takayama and A. V. Lavineko: *J. Opt. Soc. Am. B* **36** (2019) F38.
- 66) M. Nomura, R. Anufriev, Z. Zhang, J. Maire, Y. Guo, R. Yanagisawa, and S. Volz: *Mater. Today Phys.* **22** (2022) 100613.