

## 研究終了報告書

## 「極限屈折率材料の深化と熱輻射アクティブ制御デバイスの開拓」

研究期間：2018年10月～2022年3月

研究者：鈴木健仁

## 1. 研究のねらい

工場、自動車、住宅、電子機器、家電などの熱い物体から冷たい外気へは、常に熱輻射による熱輸送が起きている。これらの熱輻射はプランクの法則で決まるため、簡単には操れない。そのため、熱源自体に吸収特性を有する人工構造体(メタサーフェスやフォトニック結晶)を設けて、熱輻射を制御する研究が報告され始めている。しかしながら、既存の構造物や地球から冷たい外気や宇宙へ排出され続けている未利用の熱輻射を活用したいと考えた際、従来の熱源自体に人工構造体を直接導入する手法には限界がある。既存の構造物や空間に後から導入できる概念や技術の確立が必要である。そこで、上記の未利用のまま排出され続けている熱輻射を電気へ変換(レクテナ発電への応用)することを将来展望として掲げ、電波、光、電気、音波と同じレベルで人の思いのままに熱輻射を制御するための材料とデバイスの創製へ挑戦することが本研究の狙いである。

## 2. 研究成果

## (1) 概要

メタサーフェス(メタ表面)は、原子より大きい電磁波の波長に対しては微小なナノスケールサイズのメタ原子(メタ原子)を原子や分子に見立てて配列し、自然界には存在しない電磁的性質(比誘電率  $\epsilon_r$ 、比透磁率  $\mu_r$ )を持つスーパー材料(メタは“超”の意味)を設計できる。高屈折率メタサーフェスとしては、2011年に韓国の KAIST の研究グループが H 構造のメタ原子で、テラヘルツ波帯で高屈折率なメタサーフェスを実現した[M. Choi et al., Nature 470, 369 (2011)].しかしながら、誘電性の制御のみで磁性の制御ができておらず、非常に大きな反射が起きており、材料としての応用が困難であった。そこで研究代表者は、金属ペアカットワイヤーのメタ原子で、0.31THz で高屈折率(6.7)かつ低反射(1.2%)を有する極限屈折率材料[研究代表者が独自に発見し、名付けた材料。極限屈折率材料の開拓と応用について、電子情報通信学会より末松安晴賞が贈られた。受賞名に独自に名付けた材料の名前である極限屈折率材料が記載されている。]を実現[応用物理, 86, 877 (2017)]した。さらに0.3THz 帯(波長:1000nm)で、超高屈折率(12)かつ低反射(5.1%)を有する材料も実現した。

そこで本さがけ研究では、この独自の極限屈折率材料の支配法則の理解を深化しながら、赤外域への高周波化などの高機能化に挑戦した。まずは、JST さきがけで導入したスーパーインクジェットプリンタにより、3THz 帯の高屈折率・低反射な極限屈折率材料を実現した。メタ原子の寸法だけでなく、メタ原子の導電率の制御も、メタサーフェスの特性の設計に効果的に使える可能性も見出した。この研究成果は、2021年4月に米国光学会 Optics Express に採録され、プレスリリースを行った。そこから10倍以上の高周波化にも取り組み、2021年11月の実験で50THz 帯で100nm厚の自立誘電体膜上に電子ビームによる両面同時露光で高屈折率・低反射な極限屈折率材料を再作製し、実現できていると思われる成果

を達成(詳細は(2)詳細に記述)した。並行してスーパーインクジェットプリンタによっても、100nm厚の自立誘電体膜上に片面描画と両面描画を実現した。200THz帯の素子の実験のために、デュアルコム分光法光ネットワークアナライザを立ち上げた。高屈折率・低反射な新材料による赤外域電磁波の制御指針も構築し、2020年7月に米国光学会 Optics Express に採録され、プレスリリースを行った。50THz帯と200THz帯の高屈折率・低反射な極限屈折率材料の特許について国内と海外(PCT)で出願した。JSTのPCT出願支援の審査とPCT各国移行支援の審査の両方を通過し、支援の対象となった。0.5THz帯のゼロ屈折率・無反射材料について、2020年7月に米国光学会 Optics Express に採録された。実現した複数の材料について、東京農工大とJSTの協力により研究試料の提供体制も構築 [[http://web.tuat.ac.jp/~suzuki-lab/material\\_distribution.html](http://web.tuat.ac.jp/~suzuki-lab/material_distribution.html)]した。

特に50THz帯での高屈折率・低反射な極限屈折率材料の実現は、新たな熱輻射制御用材料を準備できたことを意味している。実現した材料を、構築した高屈折率・低反射な極限屈折率材料による赤外域電磁波の制御指針と組み合わせることで、既存の構造物や空間に後から導入できる概念や技術の確立につながる。また、熱輻射領域での設計、解析、作製、実験の知見が蓄積できたことも意味しており、今後の熱輻射制御の学術研究と産業展開に向けた大きな土台を構築できた。

## (2) 詳細

### ■ A. 極限屈折率材料の高周波化

#### ・3THz帯

3THz帯の高屈折率・低反射な極限屈折率材料を実現した。図1はJSTさがけで導入したスーパーインクジェットプリンタである。SIJテクノロジー株式会社の協力により、図2の通り厚さ5 $\mu$ mのポリイミドフィルムの表裏両面に、80,036組(428 $\times$ 187)の面対称なベアカット金属ワイヤを銀ペーストインクで描画した。テラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS)による実験で、2.97 THzで屈折率 $5.88+j1.57$ 、反射1.3%、比誘電率 $6.73+j0.85$ 、比透磁率 $5.03+j2.11$ を確認した。比透磁率を、同じ周波数で高い値で比誘電率と近付けることで、高屈折率と低反射の両方の材料特性を実現している。金属の導電率の実部と虚部を変化させた解析により、導電率の実部が金や銅の値よりも100分の1以下の金属の銀ペーストインクでも、比透磁率を比誘電率と同周波数で高い同値にできることも見出した。従来用いられていた金や銅などの良導体だけでなく、銀ペーストインクのような導電性が低い導体を用いても高屈折率・低反射な極限屈折率材料を設計できることを意味している。メタアトムの寸法だけでなく、メタアトムの導電率の制御も、メタサーフェスの特性の設計に効果的に使える可能性を示唆している。実現した高屈折率・低反射なメタサーフェスをさらに数10テラヘル

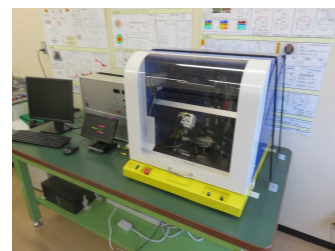


図1 スーパーインクジェットプリンタ



図2 3THz帯の高屈折率・低反射な極限屈折率材料

ツ以上まで高周波化できれば、製鋼スラブなどから排出される熱輻射を特定方向に集中させるなど熱マネジメントへの応用も期待できる。本成果は 2021 年 4 月に米国光学会 Optics Express に採録され、東京農工大と JST で連携してプレスリリースを行った。

#### ・50THz 帯

計 3 回の素子の作製を行った。

1 回目の素子の作製では、1 個の素子 HAAS\_I1\_PS\_1 を作製した。HAAS\_I1\_PS\_1 は、SEM 測定では表面側でも裏面側でも全面に金属が残ってしまっていた。

2 回目の素子の作製では、6 個の素子 HAAS\_I2\_PS\_1~6 を作製した。6 個の素子のうち 1 個で超音波洗浄でのリフトオフ中に破損が起きた。5 個の素子の内の 2 個 HAAS\_I2\_PS\_1,2 は、SEM 測定で、表面側の一部の領域で金属が残ってしまい、表面側のそれ以外の領域では金属は全てとれてしまい、さらには裏面側ではメンブレンの全面に金属が残ってしまっていた。HAAS\_I2\_PS\_3 は、SEM 測定で、表面側でも裏面側でも構造を確認できた。HAAS\_I2\_PS\_4 は、SEM 測定で、表面側でも裏面側でも全面に金属が残ってしまっていた。HAAS\_I2\_PS\_5 は、SEM 測定で、表面側で構造が見え、裏面側は全面に金属が残ってしまっていた。HAAS\_I2\_PS\_1~5 のうち、HAAS\_I2\_PS\_3 と 5 で、フーリエ変換赤外線分光法(FTIR)により 50THz 帯で低反射特性と微小な透過特性を確認した。透過特性は HAAS\_I2\_PS\_3 と 5 で、それぞれ 0.7%と 8.1%である。裏側で完全にリフトオフができず、金の層が残っていることが予想された。裏面へ塗布したレジストがリフトオフできるほどの十分な厚さでなかった可能性がある。そこで、まずは 2 層レジストによりリフトオフしやすいハングオーバー形状の作成を試みた。しかしながら寸法的に作製が難しく断念した。

そこで 3 回目の作製では、金属の成膜の厚さに対して、1、2 回目よりも 3 倍ほど厚め(300nm 予測)に 1 層レジストを塗布して作製することにした。3 回目の素子の作製では、4 個の素子 HAAS\_I1\_PS\_2~5 を作製した。4 個の素子のうち 1 個でアセトン浸漬中に破損が起きた。残りの 3 個の素子について、SEM 測定を行った。HAAS\_I1\_PS\_2,3 で、加工領域の端に近い部分で、表面側と裏面側の両方ともリフトオフできている領域がある可能性があることが分かった。HAAS\_I1\_PS\_2 を FTIR で測定し、図 3 の通り、高屈折率・低反射メタサーフェスの設計結果に近い実験結果を確認した。50THz 帯で高屈折率(設計値 9.1)・低反射な極限屈折率材料を実現できていると思われる。

#### ・デュアルコム分光法光ネットワークアナライザの立ち上げ

2021 年 3 月にデュアルコム分光法光ネットワークアナライザを導入した。200THz 帯(191~193.4 THz)の振幅と位相を同時に測定でき、2000K の熱輻射を制御する 200THz 帯の極限屈折率材料の材料特性を測定できる。デュアルコム分光法光ネットワークアナライザでは、材料の透過の振幅、透過の位相、反射の振幅、反射の位相の 4 つのデータを同時に測定でき、この 4 つのデータ(4 つの方程式)から、材料の誘電率の実部、誘電率の虚部、透磁率の実部、透磁率の虚部の 4 つ(4 つの未知数)を直接的に導出できる。FTIR などでは振幅

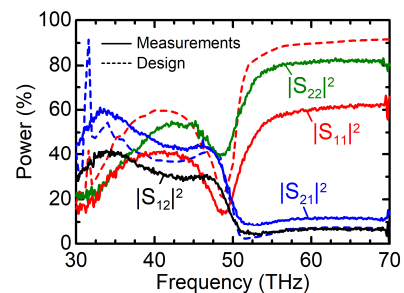


図 3 50THz 帯の高屈折率・低反射な極限屈折率材料

と位相を同時に測定することはできない。2020 年度に透過の実験系の立ち上げを行い、2021 年度に反射の実験系の立ち上げを行った。

・知的財産権

50THz 帯と 200THz 帯の高屈折率・低反射な極限屈折率材料の特許について、国内と海外(PCT)で出願した。JST の PCT 出願支援の審査と PCT 各国移行支援の審査の両方を通過し、支援の対象となった。

■B. 極限屈折率材料の支配法則の総合的な理解

極限屈折率材料の支配法則の総合的な理解を進めた。高屈折率・低反射な新材料による赤外域電磁波の制御指針も構築し、2020 年 7 月に米国光学会 Optics Express に採録され、プレスリリースを行った。また、0.5THz 帯のゼロ屈折率・無反射材料について、2020 年 7 月に米国光学会 Optics Express に採録された。実現した複数の材料について、東京農工大と JST の協力により研究試料の提供体制も構築 [[http://web.tuat.ac.jp/~suzuki-lab/material\\_distribution.htm](http://web.tuat.ac.jp/~suzuki-lab/material_distribution.htm)]した。

■C. 極限屈折率材料を構成するメタアトム配置のアクティブな制御

50THz 帯で 100nm 厚の自立誘電体膜上に電子ビームによる両面同時露光で高屈折率・低反射な極限屈折率材料を作製する知見は蓄積できた。並行してスーパーインクジェットプリンタにおいても、100nm 厚の自立誘電体膜上に片面描画と両面描画を実現し、2020 年 12 月の領域会議で進捗報告した。しかしながら、現段階ではメタアトムのアクティブ制御はあまりに現実的ではなく、C については一旦保留して、A、B、D に力を注いだ。一方で、100nm 厚の自立誘電体膜への両面加工の報告例は見つかっておらず(ナノプラットの報告書のデータベースも調査済み)、相当な難加工と思われる、得られた知見の波及効果は大きいと思われる。そこで、2021 年 3 月のエレクトロニクス実装学会でスーパーインクジェットプリンタによる 100nm 厚の自立誘電体膜の片面描画と両面描画の作製素子について発表した。

■D. 熱輻射制御デバイス

FTIRにより簡易的ではあるが、熱輻射を模擬した実験を進めた。まずは C でのスーパーインクジェットプリンタで作製した材料を FTIR で測定し、40~50THz、80~90THz 付近で構造由来の可能性のあるディップを観測した。しかしながら、非常に小さなディップで構造由来かは明確にできていない。現状の素子は焼結前のため、銀ナノインクの導電率が低いことが原因の 1 つとして考えられる。同様に両面同時露光で作製した高屈折率・低反射な極限屈折率材料を FTIR で測定し、図 3 の通り設計結果に近い実験結果を確認した。50THz で高屈折率(設計値 9.1)・低反射な極限屈折率材料を実現できていると思われる。今後、JST さきがけ(熱制御)で作製した材料や作製の知見を最大限に活用し、指向性制御の実験につなげていきたい。

### 3. 今後の展開

2020 年に 5G(Generation:世代)情報通信ネットワークが日本でも商用化された。6G 通信や 6G 通信より先の未来の通信(7G)では、現在は未利用のまま排出され続けている熱エネルギーの強力なマネジメント(サーマルマネジメント)が必要となると思われる。テラヘルツ電磁波領域の低周波側の 0.3~3THz での超高屈折率・低反射な材料は、未来の情報通信ネットワークのためのシーズを生み出せる。さらにこの材料を深化することで、テラヘルツ電磁波の指向性を鋭くして送りたい。



い方向に角度を向けられる機能的な材料(アンテナとして機能)を実現できる。テラヘルツ電磁波領域の高周波側の 3THz~50THz は、赤外線による熱輻射領域に位置している。機能性材料(アンテナとして機能)により熱輻射の向きを操り、電気に変換できれば、エネルギーの回収に応用できる。今後も引き続き、2050 年代の未来の地球の姿を描きながら、研究を進めていきたい。

#### 4. 自己評価

研究目的の達成状況については、非常に挑戦的な研究課題を設定したこともあり、容易ではなかった。一方で、3. 今後の展開を深く考えるきっかけなどにもつながり、本さがけ研究を通して、残り 30~40 年程度の研究者人生をかけて実現したい研究テーマの主軸を見出すことができたと感じている。

研究実施体制及び研究費執行状況などの研究の進め方については、JST の多大な研究支援のおかげで最大限に効果的に進められたと考えている。

研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果については、研究期間中に 7 件の査読付き英文論文誌が採択され、1 件の解説(応用物理学会フォトニクス分科会フォトニクスニュース)が採択された。また、東京農工大と JST とで協力して、2 件のプレスリリースを行うことができた。2022 年 3 月の応用物理学会でシンポジウム講演(機能性酸化物研究会)を行った。特許についても国内、海外(PCT)で出願した。JST の PCT 出願支援の審査と PCT 各国移行支援の審査の両方を通過し、支援の対象となった。また、2 件を受賞し、そのうち 1 件は学会賞である。以上より、研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果については良好と思われる。

また、常に研究総括の花村先生、アドバイザーの先生方の前向きな攻めの姿勢に大きく鼓舞され、研究者としての大切な諦めない姿勢をこの年齢で改めて学ぶことができたことがとても貴重な財産であった。さらに、本さがけ研究を通して研究や後進の指導にあたっての哲学のようなものも授けていただき、この点も非常に大きな財産となったと考えている。さがけという研究者にとっての一大チャンスの期間に、コロナウイルスによるパンデミックが起きた点だけが心残りであるが、この期間の時間も活用して、機械学習と電磁界シミュレータを連結した材料設計システムの構築や、ディープラーニングによる材料設計予測なども進めることができた。

今後も引き続き、研究に邁進し、研究者人生をかけて 3. 今後の展開を実現していきたい。

#### 5. 主な研究成果リスト

##### (1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 7件

1. Takehito Suzuki\*, Kota Endo, Jaeyoung Kim, Kazuisao Tsuruda, Masashi Sekiya, "Metalens mounted on a resonant tunneling diode for collimated and directed terahertz waves," Optics Express, vol.29, no.12, pp.18988-19000, Jun. 2021.

構築した超高屈折率・低反射な新材料によるテラヘルツメタレンズの設計指針を実験により証明した。超高屈折率・低反射なメタサーフェスによる平面アンテナを、0.3THz のテラヘルツ発振器の共鳴トンネルダイオードに搭載し、パワー密度 4.2 倍の高指向性制御と 22 度方向までの角度制御に成功した。同程度のパワー密度を実現するためには、従来は厚さがおおよそ 1~5mm 程度のレンズが必要であるが、これを 24 $\mu$ m とはるかに薄い平面アンテナに

置き換えた。コンパクトで高指向性なテラヘルツ発振器の製品化に向けた第一歩で、6G(Beyond 5G)超高速無線通信、各種センサ機器、X線に代わる安心安全なイメージングなどでの展開が大きく期待できる。さらに本設計指針を数 10THz 以上の赤外域へ適用することで、製鋼スラブなどから排出される熱輻射を特定方向に集中させるなどの熱マネジメントへの応用が期待される。

2. Harumi Asada(研究室指導学生・学術振興会特別研究員 DC), Kota Endo, and Takehito Suzuki\*, “Reflectionless metasurface with high refractive index in the terahertz waveband,” Optics Express, vol.29, no.10, pp.14513–14524, Apr. 2021.

テラヘルツ電磁波で動作する高屈折率・低反射な新材料を実現した。電波法で電波として定義される最上限の 3THz の周波数で実現した。高屈折率・低反射なメタサーフェスの作製には、スーパーインクジェットプリンタ(株式会社 SIJ テクノロジ)と呼ばれる微細な構造を描ける印刷技術を用いた。高屈折率・低反射なメタサーフェスは、電磁波を自在に操る平面で極薄なレンズに応用でき、6G(Beyond 5G)以降も見据えた未来の情報通信機器での展開が期待される。また、高屈折率・低反射なメタサーフェスをさらに数 10 テラヘルツ以上まで高周波化できれば、製鋼スラブなどから排出される熱輻射を特定方向に集中させるなど熱マネジメントへの応用も期待される。

3. Takehito Suzuki\*, Kota Endo, and Satoshi Kondoh, “Terahertz metasurface ultra-thin collimator for power enhancement,” Optics Express, vol.28, no.15, pp.22165–22178, July 2020.

超高屈折率・低反射な新材料によるテラヘルツメタレンズの設計指針を構築した。独自の超高屈折率・低反射なメタサーフェスを応用し、電磁波を変形、操作している。平面で薄型なメタサーフェスは幅広いテラヘルツ波帯光源に集積化できることから、6G(Beyond 5G)以降も見据えた未来の通信への応用が期待される。さらに本設計指針を数 10THz 以上の赤外域へ適用することで、製鋼スラブなどから排出される熱輻射を特定方向に集中させるなどの熱マネジメントへの応用が期待される。

## (2)特許出願

研究期間全出願件数:2件(特許公開前のもも含む)

## (3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

### ■ 学会誌(解説など)(2件中2件を記載)

1. 鈴木 健仁\*, “6G通信に向けた高屈折率無反射メタサーフェスによるテラヘルツフラットオプティクス,” 応用物理学会フォトニクス分科会フォトニクスニュース, Aug. 2021. (査読中)
2. 鈴木 健仁\*, “第6回 末松安晴賞贈呈 極限屈折率材料の開拓によるテラヘルツ応用システムの研究,” 電子情報通信学会誌, vol.103, no.7, pp.159–160, July. 2020. (独自に見出し、名付けた材料へ、電子情報通信学会より贈られた。受賞名に独自に名付けた材料の名前が記載されている。)

## ■ 国際会議

1. Takehito Suzuki\*, Harumi Asada, Kazuhisa Watai, Haruaki Nakao, and Kota Endo, “Reflectionless metamaterials with high refractive indices for manipulation of thermal radiation,” The 9th International Symposium on Radiative Transfer, P25, Athens, Jun. 2019.

この国際会議で知り合ったKAISTのProf. Bong Jae Leeを2019年8月に東京農工大に招聘し、図4の通り海外招聘講演会



図4 海外招聘講演会

「Tailoring Radiative Properties of Micro/Nanostructures for Solar Thermal Applications」を開催した。引き続き、海外連携も模索していきたい。

2. Kazuhisa Watai(研究室指導学生), Harumi Asada, Kota Endo, Haruaki Nakao, and Takehito Suzuki\*, “Meta-surfaces with high refractive index and low reflectance in the 50- and 200-THz bands, ” JSPS metamaterials 187, Tokyo Institute of Technology, Mar. 2019.

## ■ 受賞(2件中2件を記載)

1. 2019年度末松安晴賞「極限屈折率材料の開拓によるテラヘルツ応用システムの研究」(2020/6/4)
2. 第18回船井学術賞「極限屈折率材料の開拓によるテラヘルツ応用システムの研究」(2019/4/20)

## ■ 報道関係(17件中1件を記載)

1. Chem-Station, 「プリンターで印刷できる、電波を操る人工スーパー材料」(2021/6/4). (研究室の博士課程の学生(日本学術振興会特別研究員DC1)が取り上げられている。)