非周期性を含んだマイクロ球周期構造の熱ふく射特性評価

Thermal Radiation Properties of Silica Microstructures with Nonperiodicity

○学 脇田 健太郎 (九工大院)
池町 希 (九工大院) 正 宮崎 康次 (九工大)Kentaro WAKITA, Nozomi IKEMACHI*, Koji MIYAZAKI*
Department of Biological Function and Engineering, Kyushu Institute of Technology
*Department of Mechanical and Control Engineering, Kyushu Institute of Technology

Key Words: Colloidal crystals, Thermal radiation, Diffuse reflection

1. 緒言

近年、省エネルギーやエネルギー有効利用の観点から、加熱炉などの高温場におけるふく射熱損失の低減や TPV 発電によるふく射エネルギーの電力への変換など、ふく射エネルギーの取り扱いが注目されている。MEMS 技術の発達に伴い、フォトニック結晶の表面微細周期構造を用いて、極めて人工的な物性による熱ふく射特性を制御できるようになった。しかし、MEMS 技術を基盤として作製される微細構造は、製造工程が複雑かつ大面積への作製も困難である。そこで我々は μm オーダーのシリカ粒子を Si 基板上に自己組織化⁽¹⁾して、シリカ単体では実現しえない赤外光反射表面を作製した。構造表面は、転位や空孔などの自己組織化による乱れや非周期性により、やや特徴的なものとなっている。その非周期性が表面における光の散乱・拡散現象に関係していると考えられる。

本研究では、マイクロ球自己組織化構造の非周期性と散乱・拡散現象の関係を解明することを目的とする。そこで、厳密結合波解析⁽²⁾ (Rigorous Coupled-Wave Analysis :RCWA) を用いて、非周期を持たせた構造の全反射率を計算した。一方、散乱・拡散現象を実験的に明らかにするために、複回転放物面鏡法に基づく実験装置を作製し、拡散反射を測定した。その実験結果と数値計算結果を比較することにより、微細構造の非周期性が熱ふく射特性に与える影響を考察した。

2. RCWA 法を用いた数値計算

2-1 厳密結合波理論 独立散乱の仮定が適用可能とされる $c/\lambda > 0.5$ (c は粒子の隙間, λ は電磁波の波長) をマイクロ球自己組織化構造が満たさないため、その散乱現象は従属散乱となる。つまり、ふく射伝熱輸送方程式に適用できなくなり、電磁場の計算が必要となる。そこで、本研究では RCWA 法を用いて従属散乱領域における数値計算を行った。

RCWA 法とは 1980 年代初めに M.G. Moharam と T.K. Gaylord が提案した微分法で、マクスウェル・ヘルムホルツ方程式の境界値問題を解く一つの手法である。周期構造を深さ方向にスライスし、各層における誘電率分布を求める。各層における結合波方程式を作り、各層において固有な「モード」の線形結合として、電磁波の一般解を求める。電磁波に対する境界条件を与えることにより、全領域にわたりモードの係数間の比が一意的に決まるため、全領域の電磁波の状態がわかる。これにより、光の強度分布や回折効率、反射率・透過率・吸収率などの計算が可能となる。本研究では RSOFTE社の電磁波解析ソフト DiffractMOD を用いて非周期性をもたせた周期構造の全反射率を数値計算で求めた。

Fig.1 Calculation model of silica micro-structures

Fig.2 Total reflection spectra of 2 μm -10 layered model calculated by RCWA Fig.3 Total reflection spectra of 3 μm -10 layered model calculated by RCWA

2-2 数値計算モデル 計算に用いたモデルは、実際のサンプル表面の顕微画像から画像処理により粒子の配列を読み込み (図 1 左)、作成した。読み込んだ粒子の層を基準に、3 つの隣接する粒子の重心上に上層の粒子を置くように粒子を配列した。ただし、各層の粒子の中心は同じ平面上に置いた。基準の層を A、次の層を B とすると ABAB... となるように計 10 積み、10 層のモデルを作成した (図 1 右)。層の平面方向は周期境界条件をとっている。各層間の距離 a は 1 つのモデルで一定とした。粒子直径を d とした時に、密な配列である $a = \sqrt{6}/3d$ から、 $a = 0.90d, 0.95d, 1.00d$ まで離し、直径 2 μm と 3 μm の 2 種類、計 8 個のモデルを作成した。

2-3 計算結果と考察 図2に2 μm 粒子, 図3に3 μm 粒子の計算結果を示す. どちらの結果においても粒子直径の約2倍の波長付近においてブラッグ反射による反射の上昇が確認できた. 一方, 粒子直径以下程度の波長領域においても反射率の上昇がみられる. 各層間の距離が最密である場合と比較したとき, このような反射率の上昇は完全な周期構造モデルの計算結果ではみられない⁽³⁾. つまり, これは構造の非周期構造の拡散反射による反射の上昇だと考えられる. また, どちらのグラフにおいても各層間の距離が離れるに従って反射率の上昇が強まっている. これは, 層間の隙間における光の散乱の影響が原因だと考えられる.

3. 周期構造作成

積層法を用いてマイクロ球自己組織化構造を作製した. 溶剤に単分散させたシリカ微粒子(触媒化成工業)を用い, 気液界面での自己組織化現象を利用してシリカの単層膜を生成, 基板上に一層ずつ積層させる手法により周期構造を作製した⁽⁴⁾. 基板にシリコンウエハ(厚さ1 mm)を使用し, 粒子直径が2 μm , 3 μm のシリカ微粒子をそれぞれ10層積層し, 2種類のサンプルを用意した.

4. 拡散反射測定

4-1 実験装置 拡散反射測定装置の概略図を図4に示す. この光学系は, 凹面鏡の焦点に設置された放射源, 向かい合わせになった2つの回転放物面鏡, 凹面鏡・平面鏡から成っている. 放射源は直径2 mmのアルミナ絶縁管に直径0.1 mmのニクロム線を5 mmほど巻いたものを用いた. 放射光はまず凹面鏡・平面鏡により平行化, 集光され, 中心軸上に穴の開いた回転放物面鏡内に入射される. その入射光は, 入射側の回転放物面鏡の焦点に設置されたサンプル(中心軸に対して20°傾いて設置されている)に入射し, 拡散反射される. 拡散反射された光は放物面鏡によって平行化され, もう一方の回転放物面鏡の焦点に集光する. その焦点と自身の焦点が一致するように凹面鏡を設置し, 再び平行化され, 他方の開口に出た反射光を外部光源用のFT-IR (FT/IR-670 plus, 日本分光)を用いて測定した.

4-2 測定方法 まず, バックグラウンド測定としてサンプルの代わりにアルミラーを設置し, 垂直反射を測定した. これを参照スペクトル $I_{Al}(\lambda)$ とする. 次にサンプルに取り替え, 拡散反射スペクトルを測定した. この拡散反射スペクトルを $I_r(\lambda)$ で表すと, 拡散反射率 $R(\lambda)$ は $R(\lambda) = I_r(\lambda)/I_{Al}(\lambda)$ で表される. ただし, 拡散反射測定では非常に微弱な赤外光の測定を行うため, 外乱を受けやすい. 特に波長3 μm 以下でノイズの影響が顕著である. そのため今回の測定では測定値の20点平均の値をとり, 定量的な値とはなっていない. 本研究でFT-IRにより測定できた波長領域は1.5-5 μm である.

4-3 測定結果と考察 測定結果を図5, 図6に示す. 図5が2 μm 粒子, 図6が3 μm 粒子, それぞれ10層積層したサンプルの拡散反射スペクトルを示している. 図6において約波長4.5 μm 付近において反射の上昇が確認できた. これは図7では見られないため, ブラッグ反射によるものであることがわかる. どちらの結果においても, 粒子直径以下の波長で反射率が上昇していることがわかる. これは, 計算結果からもわかるように, 非周期構造の拡散反射によるものである. この拡散反射は, 粒径パラメータ $x = \pi d/\lambda$ が非常に大きい場合のミー散乱による散乱であると考えられる. さらに, 計算結果と比較すると, 図5から拡散反射による反射がブラック反射と同じ程度上昇していることから, 本研究の積層法で

Fig.4 Operation of the measurement of diffuse reflection

Fig.5 Diffuse reflection spectra of 2 μm -10 layered sample

Fig.6 Diffuse reflection spectra of 3 μm -10 layered sample

作製されたマイクロ球周期構造の各層の粒子は, 下の層の粒子の隙間に密にはまり込んでいるのではなく, ある程度隙間をもって配列していると考えられる.

5. 結言

本研究では拡散反射を測定するための装置を開発し, マイクロ球周期構造の拡散反射率を測定, および, RCWA法による全反射率の計算を行った. 両結果より, 粒子直径以下の波長領域において拡散反射が確認された.

謝辞

本研究は文部科学省科学研究費補助金(基礎研究(A)一般20246039)(研究代表者: 牧野俊郎教授(京都大学))の援助を受けた. 記して謝意を表する.

参考文献

- (1) Denkov, N. D., Velev, O. D., et al., "Two-dimensional crystallization", *Nature*, Vol.361, (1993) 26
- (2) M.G.Moharam and T. K. Gaylord, "Diffraction analysis of dielectric surface-relief gratings", *J. Opt. Soc. Am.*, Vol.72, No. 10/October (1982)
- (3) 脇田健太郎, 第46回日本伝熱シンポジウム講演論文集 Vol. I (2009), 215-216
- (4) M.Kihara et al. *J. Therm. Sci. Tech.* 1 (2006) 12