

「遠方場 Super Planckian 熱ふく射輸送の可能性」

研究期間：2019年10月～2023年3月

研究者：櫻井 篤

1. 研究のねらい

全物質の中で最も理想的な熱ふく射は黒体放射によって行われ、そのエネルギー輸送量の最大値はプランクの法則に従う(黒体放射限界)。しかし近年、ナノスケールギャップ間における近接場光学効果によって、特異的な熱ふく射輸送現象が発現し、黒体放射限界をゆうに超えるエネルギー伝達量が得られることが、多くの理論・実験的研究の両面から明らかにされている。

一方、この遠方場において黒体放射限界を超える Super Planckian 熱ふく射輸送現象に関する研究はほとんど行われていない。現在までに、ナノ・マイクロスケールの物体が光共振状態となると、光学的断面積が幾何学的断面積よりも大きくなるため、熱平衡状態において遠方場 Super Planckian 熱ふく射輸送が可能であると主張もある。しかし、この現象が本当の意味で Super Planckian かどうかは研究者の間でも意見が分かれている。さらに、光共振状態にあるナノ・マイクロ物質を多数並べてマクロスケールに展開したとしても、光学的断面積と幾何学的断面積が同等になるため、結局は Super Planckian ではない。

そのような背景の下、熱平衡状態のマクロスケールな物体間において遠方場 Super Planckian 熱ふく射は不可能であると判断し、本研究では非平衡熱ふく射現象に着目した。これまでの熱ふく射研究では、主に金属や誘電体などを熱ふく射エミッターとして扱っており、基本的には熱揺動電流に起因した電磁波放射という物理的な描像で“熱ふく射”を理解してきた。しかし、半導体ではバンドギャップが存在するため、フォトン吸収・放出という光物性物理学の観点が必要となる。本研究では、揺動電磁気学シミュレーションを新たに導入し、半導体における非平衡熱ふく射現象の物理を解明することを目的とする。具体的な研究対象として、中赤外光領域で特徴的な半導体特性を持つ二次元材料として注目される黒リン(black phosphorus, BP)を非平衡熱ふく射エミッターとして採用し、遠方場へ放射されるエネルギーフラックスが、どのように黒体放射限界を超えるのかを数値計算および実験の両面から明らかにする。もう一つの研究目的は、この非平衡熱ふく射現象を応用した新たな発電方式であるサーマルフォトニクス(TPX)発電システムの有効性について追求することである。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究課題では主に3つの研究テーマを遂行した。各テーマの概要を以下に述べる。

研究テーマ A「非平衡熱ふく射の揺動電磁気学シミュレーション」

本テーマでは、半導体を用いた非平衡熱ふく射エミッターに着目した。この非平衡熱ふく射を活用することにより、マクロスケールの物体間においても遠方場までプランクの法則を超えた熱ふく射エネルギー輸送が可能かどうかを検証した。具体的な研究対象として、近年、中赤外光領域で特徴的な半導体特性を持つ二次元材料として注目される黒リン(black phosphorus, BP)を非平衡熱ふく射エミッターとして採用し、揺動電磁気学シミュレーション

を行った。その結果、温度が同じであれば、化学ポテンシャルが正の光子は、化学ポテンシャルのない光子(熱放射)よりも光子状態あたりのエネルギーが高くなり、黒体放射を超えるエネルギーフラックスとなることがわかった。

研究テーマ B「非平衡熱ふく射を用いたサーマルフォトニクス発電」

本テーマでは、新たな発電方式であるサーマルフォトニクス(TPX)発電の研究に着目した。実際、理想的な黒リン半導体が作製できたと仮定して TPX 発電システムに応用した場合の揺動電磁気学シミュレーションを行った。高温側熱源(450 K)に接するエミッターと低温側熱源(300 K)に接する PV セル間におけるエネルギーフラックスに対するギャップ距離の影響を調べた結果、10 mm 離れた場合でも黒体放射限界を超えることがわかった。さらに同じ条件で発電量とカルノー効率で規格化された発電効率について熱光起電力発電と比較した結果、発電効率は両者ともカルノー効率比にして20~25%程度と変わらないが、発電量については TPX 発電の方が10倍ほど大きくなっていることがわかった。

研究テーマ C「非平衡熱ふく射の実験的観測」

黒リンを用いた非平衡熱ふく射エミッターの作製および赤外分光計測を行った。まず、非平衡熱ふく射エミッターはグラファイト/BP/グラファイトのサンドイッチ構造となっており、それぞれ機械的剥離法によって成膜した。この非平衡熱ふく射を微小面積からの光放射が捉えられるエミッション型顕微 FTIR 装置によって測定したところ、黒リンのバンドギャップに相当する波長 4 μm 付近で赤外発光が観測された。この観測は室温で行われたため、波長 4 μm 付近での熱放射は微弱であることから、非平衡熱ふく射が観測できたと考えられる。

(2) 詳細

研究テーマ A「非平衡熱ふく射の揺動電磁気学シミュレーション」

エミッターとアブソーバー間が無限平行平板と仮定できるような系では、熱平衡時に黒体放射を超えたエネルギー輸送は不可能であることが示唆されている。したがって、このような系においては高温側エミッターに電流注入によって化学ポテンシャルを導入し、非平衡熱ふく射を活用することにより、プランクの法則を超えた光エネルギー輸送の可能性がある。

本研究では、近年、中赤外光領域で特徴的な半導体特性を持つ二次元材料として注目される黒リン(black phosphorus, BP)を非平衡熱ふく射エミッターとして採用し、揺動電磁気学シミュレーションを行った。BP のバンドギャップは 0.342 eV である。化学ポテンシャルが 0~0.15eV の範囲にある場合のエネルギーフラックスの計算結果を図 1 に示す。比較のため、黒体のスペクトルエネルギーフラックスも示している。BP エミッターに印加する化学ポテンシャルを大きくすると、BP バンドギャップより短い波長域の遠方場エネルギーフラックスが増加し、黒体限界を超えることが

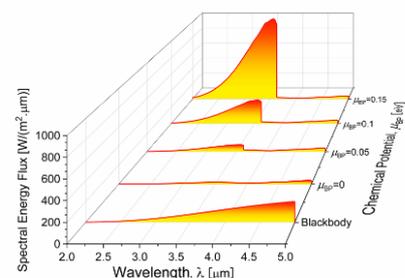


Fig. 1 黒リンエミッターによる遠方場非平衡熱ふく射

できている。温度が同じであれば、化学ポテンシャルが正の光子は、化学ポテンシャルのない光子(熱放射)よりも光子状態あたりのエネルギーが高くなり、黒体放射を超えるエネルギーフラックスとなることがわかった。

このようなことが起こる理由は、現在のところ次のように考えている。図2で示すように非平衡熱ふく射エミッター内では、熱源による熱励起と駆動電力による電気励起によって電子・ホールペアが生成された

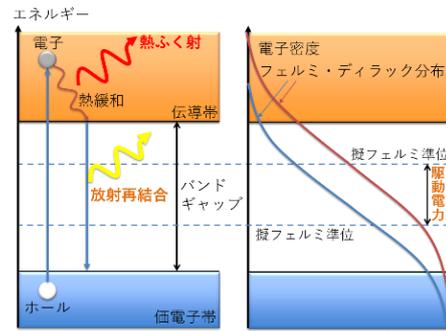


Fig. 2 半導体における非平衡熱ふく射

後、擬フェルミディラック分布に従って伝導体中に豊富な電子が存在できる。その電子は、熱緩和しながらエネルギーの一部を熱ふく射として放射する。またバンドギャップ端でのキャリアは電子・ホールの放射再結合を引き起こす。これらが合わさって、遠方場に向けて非平衡熱ふく射を放射することが出来るのではないかと推察している。

研究テーマ B「非平衡熱ふく射を用いたサーマルフォトリクス発電」

非平衡熱ふく射を得るためには、BP エミッターに駆動電力を与えなくてはならない。これはエネルギーハーヴェスティングの観点からは矛盾しているように思える。そこで本研究では、新たな発電方式であるサーマルフォトリクス(TPX)発電の研究に着目する。図3にTPX発電システムの概要を示す。TPX発電では、半導体による非平衡熱ふく射を光起電力(PV)セルに照射し、光電変換を行うものである。PVセルで生成された電力のうち一部を非平衡熱ふく射エミッターの駆動電力として使用する。一方、従来技術である熱光起電力(TPV)発電は、金属などの高温エミッターから純粋な熱ふく射のみをPVセルに照射する。プランクの法則から、PVセルのバンドギャップ以上のエネルギーを持つ熱ふく射を発生させるには2000°C近くになる超高温熱源が必要であり、すなわち、200°C以下の排熱を回収するTPV発電は原理的に難しい。一方で、本研究で着目するTPX発電システムは、そこまでの高温エミッターは必要ないため、我が国における排熱エネルギーの約76%を占める200°C以下の排熱エネルギーを回収できる技術として応用が期待できる。

実際、理想的な黒リン半導体が作製できたと仮定してTPX発電システムに応用した場合の揺動電磁気学シミュレーションを行った結果を以下に示す。高温側熱源(450 K)に接するエミッターと低温側熱源(300 K)

に接するPVセル間におけるエネルギーフラックスに対するギャップ距離の影響を調べた結果が図4である。通常、ギャップ距離10 μm以上あれば、近接場効果の影響はほとんど無いと考えられるが、10 mm離れた場合でもエネルギーフラックスの大きさが

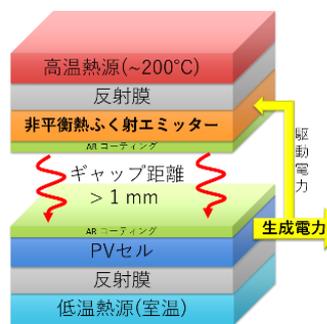


Fig. 3 TPX発電システムの概要

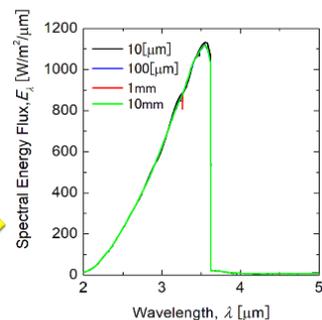


Fig. 4 エネルギーフラックス

維持されることが示されている。また、同じ条件で発電量とカルノー効率で規格化された発電

効率について TPV 発電と比較した結果を図5に示す。発電効率は両者ともカルノー効率比にして 20~25%程度と変わらないが、発電量については TPX 発電の方が 10 倍ほど大きくなっていることがわかる。これは、非平衡熱ふく射を効果的に利用することで、比較的低温な排熱エネルギーの回収が可能であることを示唆している。

この結果はギャップ距離を何 cm と離しても結果は変わらないと考えられるため、かなり遠方場までエネルギーを伝達できる可能性がある。従来技術である、熱電発電や近接場 TPV 発電と比較して、熱源から離れた状況で発電ができれば産業応用上の自由度が格段に上がる。ただし、エミッター・PV セル間の距離を離すとそれらの形態係数が関わってくるため、将来的にはこの非平衡熱ふく射エミッターに指向性を持たせることが必須である。

研究テーマ C「非平衡熱ふく射の実験的観測」

黒リンを用いた非平衡熱ふく射エミッターの作製および赤外分光計測について述べる。まず、非平衡熱ふく射エミッターは図 6 のようにグラファイト/BP/グラファイトのサンドイッチ構造となっており、それぞれ機械的剥離法によって成膜した。この手法は、グラファイトブロックおよびバルクの黒リンからスコッチテープで機械的に薄膜を剥離した後、デジタル顕微鏡で観察しながら薄膜を積層してデバイス化するものである。自作した機械的剥離のための装置は、作業全体を窒素雰囲気中で行えるよう工夫した。その装置概要は図 7 の通りである。

図 8 に作製したデバイスの概要を示す。両側は電極であり、上下グラファイト層に繋がっている。また上下グラファイト層は、ショットキー障壁の役割を持っており、このデバイスに電流を流すことで非平衡熱ふく射を発生させることが出来ると考えられる。この非平衡熱ふく射は、微小面積からの光放射が捉えられるエミッション型顕微 FTIR 装置によって測定した。この FTIR についても全て窒素雰囲気中で測定することにより、デバイスの劣化と大気による赤外光ノイズを低減させることができた。その赤外分光結果を図 9 に示す。この図からわかるように、黒リンのバンドギャップに相当する波長 4 μm 付近で赤外発光が観測された。この観測は室温で行われたため、

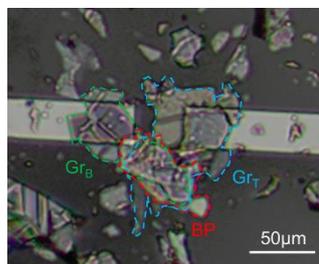


Fig. 8 作製した黒リンエミッター

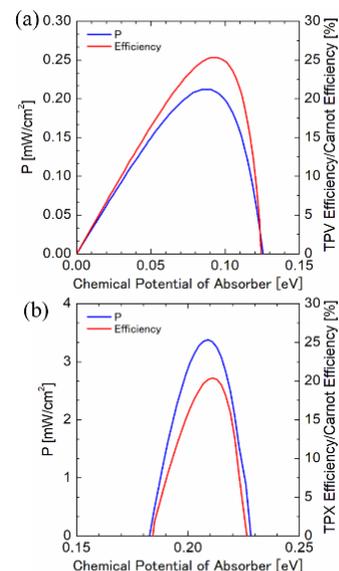


Fig. 5 (a) TPVおよび(b) TPX発電の発電量と発電効率（カルノー効率で規格化）

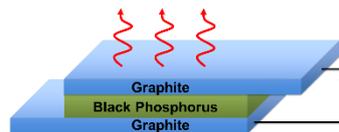


Fig. 6 黒リンエミッターの概要図

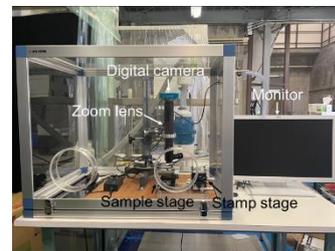


Fig. 7 機械的剥離装置

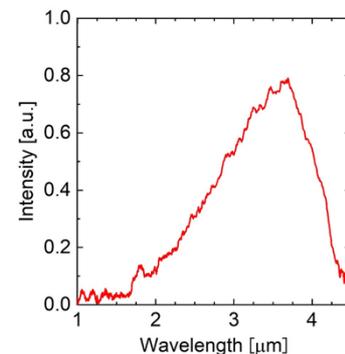


Fig. 9 黒リンエミッターの非平衡熱ふく射測定

波長 4 μm 付近で通常の熱放射は微弱であることから、非平衡熱ふく射が観測できたと考えられる。

3. 今後の展開

現在までに揺動電磁気学シミュレーションを用いた非平衡熱ふく射の物理について、少しずつ理解が進んでいるが、本研究課題で扱ったのは未だ半導体の理想的な状態である。具体的には、半導体の性能向上を妨げる非放射再結合の効果が考慮に入っていないため、今後はこのような非平衡熱ふく射の物理に電子・フォトン・フォノンの三者がどのように相互作用するのかを詳細に研究しなくてはならない。これが明らかになると、半導体の温度依存性や耐熱性に関する貴重な基礎的知見が得られるため、学術的波及効果が期待できる。

また、実験に関してはまだまだ問題が多く、黒リンの成膜は現状、一枚一枚を黒リン結晶から機械的剥離法によって作製しているが、サブミリオーダーの微小面積でしか実現できていない。また、剥離法という人為的な作業によって膜の性質が左右され、光電変換の再現性の面からも課題は多い。本研究課題で培った数値計算・実験技術を、新たな半導体材料に応用することで TPX 発電システムの実証試験を5年以内に成功させたいと考えており、社会実装に耐えうる性能向上試験にはさらに5年の研究開発期間がかかると見込んでいる。

4. 自己評価

当初の目標であった、“熱平衡状態におけるマクロスケールの物体間において遠方場 Super Planckian 熱ふく射輸送を実現させる”ということについては、残念ながら失敗に終わった。しかし、この検討を続ける中で培った数値計算技術はその後の研究にも役立っている。すなわち、さきがけ研究期間の後半では特に非平衡熱ふく射の物理について着目し、それがどのように黒体放射限界を超えるのかを揺動電磁気学シミュレーションを用いることで明らかにしてきた。さらに、その非平衡熱ふく射現象を応用した TPX 発電システムについて基礎的検討を行い、同じ条件で比較しても従来の熱光起電力発電システムと比較して有用性があることを示すことができた。この TPX 発電システム全体について実証実験を行うことは出来なかったが、黒リンエミッターを作製し、非平衡熱ふく射を観測することが出来たことは今後の研究への大きな一歩になると評価している。

我が国が直面するエネルギー問題では、高効率な排熱エネルギー回収技術が期待されている。具体的には工業排熱(740PJ/year)のうち 76%は、“200°C以下の低温排熱”であることが明らかとなっており、この熱量の大きさは、100 万 kW 級の原子力発電所 18 基を一年間フル稼働させた場合のエネルギーに相当する。本研究課題で着目した TPX 発電システムは、このような比較的低温の排熱エネルギーを効果的に回収できる新たな産業技術となる可能性がある。TPX 発電システムの研究を通して、半導体中の電子・フォトン・フォノンの相互作用に関する知見を深めることにより、熱工学分野のみならず半導体物理・工学分野全体への学術的波及効果が期待できる。

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: 1件

1. Yuki Matsuno, Nobuhiro Nagumo, Masaya Araki, Kyohei Yada, Kazuki Yamaga, Atsushi

Sakurai, “Non-equilibrium mid-infrared black phosphorus light emitter and absorber for thermophotonic applications” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 288, pp. 108271-108271, 2022.

本研究では、サーマルフォトンクス(TPX)システムのための非平衡中赤外黒リン(BP)エミッターについて検討した。揺動電磁気学シミュレーションを用いることで、BP 発光体のエネルギーフラックスは黒体限界を超えることを明らかにした。また、BP エミッターを利用した TPX システムの発電量と効率を計算し、議論した。本研究の成果は、エネルギー伝送の基礎研究のみならず、TPX 発電システムによる効率的な熱エネルギー回収にも有用である。

(2) 特許出願

研究期間全出願件数:0 件(特許公開前のものも含む)

(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)

1. [招待講演] Atsushi Sakurai, “Thermal Photonics for Efficient Utilization of Thermal Energy”, *The 10th US-Japan Joint Seminar on Nanoscale Transport Phenomena*, Coronado, California, USA, July 2023 (発表予定).
2. [招待講演] Atsushi Sakurai, “Non-equilibrium Light Emission from Quantum Materials for Thermophotonic Applications”, *The 12th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics*, Online, July 2022.
3. Koya Misaki, Kazuki Matsumoto, Atsushi Sakurai, “Light emission measurement of graphene FETs for application to high-efficiency infrared emitters”, *The 13th Asian Thermophysical Properties Conference*, Online, September 2022.
4. Kazuki Yamaga, Nobuhiro Nagumo, Ryo Sugimoto, Yuki Matsuno, Atsushi Sakurai, “Non-equilibrium light emission simulation of quantum materials using fluctuational electromagnetics”, *The 13th Asian Thermophysical Properties Conference*, Online, September 2022.
5. Yuki Matsuno, Masaya Araki, Nobuhiro Nagumo, Kyohei Yada, Kazuki Yamaga, Atsushi Sakurai, “Mid infrared thermal emitter based on black phosphorus semiconductor”, *The 2nd Asian Conference on Thermal Sciences*, Online, October 2021.