

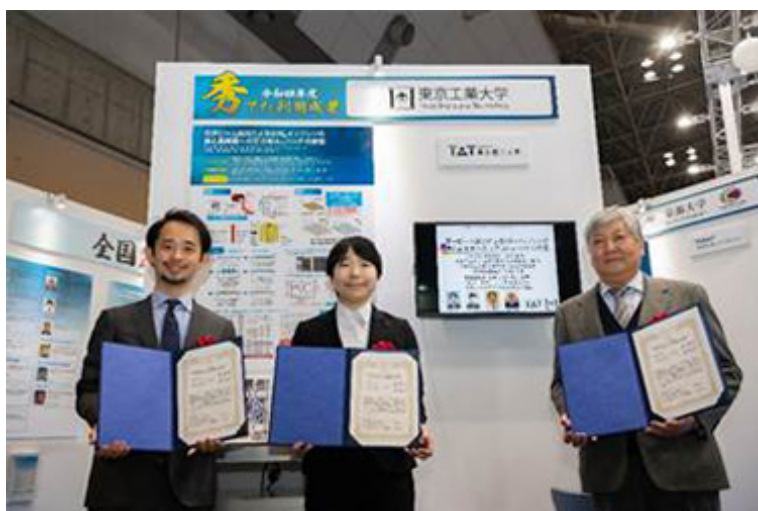


本記事は、文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」秀でた利用成果について紹介するものです。

文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ 令和4年度秀でた利用成果

電子ビーム露光による SiNx メンブレンの表と裏両面への正方形 Au パッチの作製

^a 東京農工大学 工学研究院 先端電気電子部門, ^bJST 創発研究者, ^c 東京農工大学 工学府 電子情報工学専攻, ^d 日本学術振興会 特別研究員 鈴木 健仁 ^{a,b}, 朝田 晴美 ^{c,d}
 東京工業大学 工学院 電気電子系 宮本 恭幸, 東京工業大学 科学技術創成研究院 梅本 高明



(左) 東京農工大学 鈴木 健仁, 朝田 晴美, 東京工業大学 梅本 高明, (右) 東京工業大学 宮本 恭幸

1. まえがき

身の回りの熱源からは、熱ふく射と呼ばれる電磁波が放射されている。熱ふく射のスペクトルは熱源の温度に関係している。例えば、電子機器に用いられる半導体などを例に、500K の温度の黒体からは約 50THz に強度のピークを持つ熱ふく射が放射される。製鉄所の溶鉄などを例に、2000K の温度の黒体からは約 200THz に強度のピークを持つ熱ふく射が放射される。高温の物体から低温の大気(約 300K) や宇宙空間 (約 3K) へは熱ふく射による熱輸送が起きているが、熱ふく射のエネルギーの多くは未利用のままである。熱ふく射の指向性やスペクトルを自由自在に制御できれば、熱ふく射のエネルギーを回収してエネルギーハーベスティングにつなげたり、熱ふく射の熱輸送を制御してサーマルマネジメントにつなげたりなどの未来が考えられる。他研究グループによる先行研究として、熱源に微細構造を作製することで、熱ふく射の指向性やスペクトルを制御できることが報告されている [1]。しかしながら、既存の物体から放射され続けている熱ふく射を制御するた

めには、熱源に直接加工する方法には限界がある。

そこで我々は、熱源を直接加工せず、熱源から一旦放射された熱ふく射を後から指向性制御するために、メタサーフェスと呼ばれる薄型で平面状の人工構造材料の基礎研究を進めている。メタサーフェスは、メタアトムと呼ばれる波長よりも小さな周期構造からなる人工構造材料である。我々はこれまでに、独自の構造で、高屈折率、ゼロ屈折率、負の屈折率まで、様々な屈折率を有する、無反射なテラヘルツ波帯メタサーフェスを実現してきている [2][3]。また、独自のメタサーフェスをもとに、テラヘルツ波連続発振光源に搭載して光源の指向性を制御できるメタレンズアンテナも提案し、実験により動作実証している [4][5][6][7]。赤外域の 50THz 帯で様々な屈折率を有する低反射なメタサーフェスを実現できれば、メタレンズアンテナなどへ展開することで、熱源から一旦放射された熱ふく射の指向性を後から制御できる可能性がある。

今回、熱ふく射の指向性制御に向け、50THz 帯で高屈折率・低反射な特性を持つメタサーフェスの実現を進めた [8]。東京工業大学ナノテクノロジープラットフォーム (現マテリアル先端リサーチインフラ) のご支援により、“両

面同時電子ビーム露光法”という新たな作製法を構築し、厚さわずか 100nm の極薄の誘電体膜の表と裏の両面へ微細な金属構造を作製した。作製したメタサーフェスを実験で測定し、50THz で屈折率 5.9、反射 16.7% の高屈折率・低反射な光学特性を確認した。

2. 高屈折率・低反射なメタサーフェスの構造と動作原理

図 1 に、高屈折率・低反射なメタサーフェスの全体図と拡大図を示す。高屈折率・低反射なメタサーフェスは、誘電体膜の表と裏の両面に、波長よりも小さい微細な正方形金属パッチを周期的に多数配置した構造である。正方形金属パッチの大きさや間隔を設計することで、メタサーフェスの光学特性を設計できる。

図 2 (a) と (b) にそれぞれ、メタサーフェスに電磁波が入射した場合の等価回路を示す。等価回路を用い

て、高屈折率・低反射なメタサーフェスの動作原理を説明する。図 2 (a) は、電磁波の電界により誘電体膜の表と裏の片面ごとの金属パッチに同方向の電流が流れ、メタアトムが直列 LC 共振回路として動作する。直列 LC 共振回路で電磁波の電界に対する応答を制御することで、誘電率を制御できる。図 2 (b) は、電磁波の磁界により誘電体膜の表と裏の両面の金属パッチに反対方向の電流が流れ、メタアトムが並列 LC 共振回路として動作する。並列 LC 共振回路で電磁波の磁界に対する応答を制御することで、透磁率を制御できる。メタサーフェスの比誘電率 ϵ_r と比透磁率 μ_r より、メタサーフェスの屈折率は $n = \sqrt{\epsilon_r \cdot \mu_r}$ で表せる。メタサーフェスの反射に関する比インピーダンスは $Z_r = \sqrt{\mu_r / \epsilon_r}$ で表せる。比インピーダンス Z_r が 1 に近づくと、インピーダンス整合によりメタサーフェスは無反射に近づく。比誘電率と比透磁率を同じ周波数で高い値かつ同じ値に近づけることで、高屈折率かつ無反射な特性を実現できる。

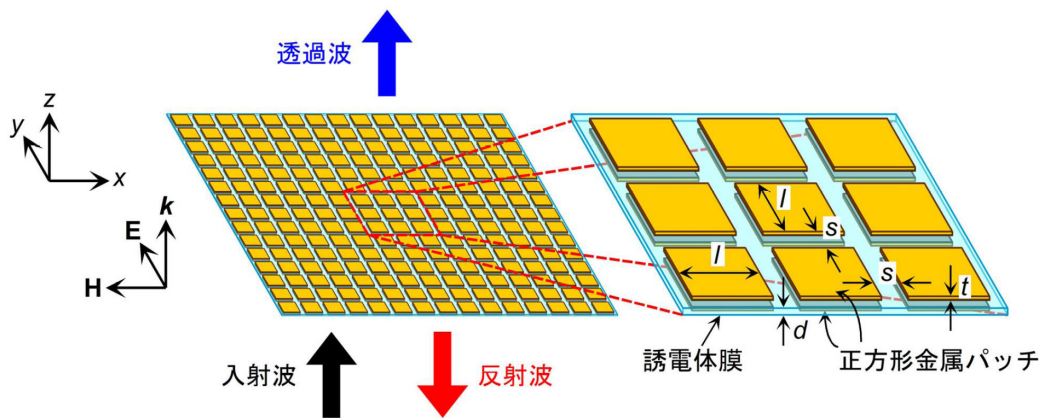


図 1 高屈折率・低反射なメタサーフェスの全体図と拡大図

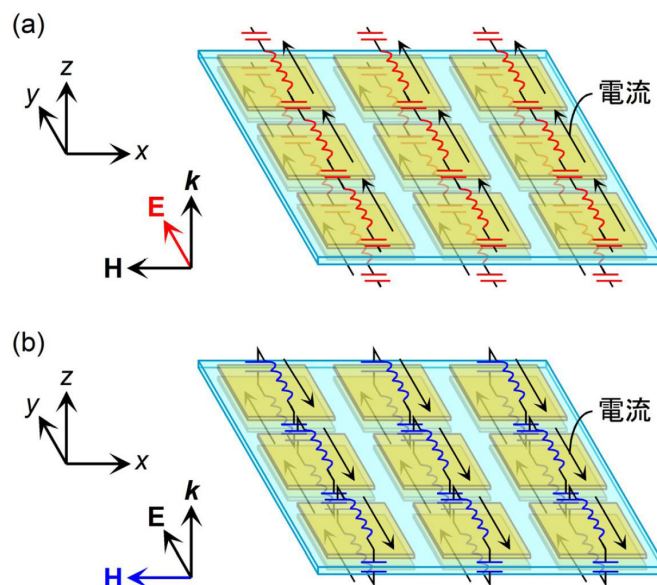


図 2 高屈折率・低反射なメタサーフェスの等価回路
(a) 誘電性の等価回路 (b) 磁性的等価回路



3. 高屈折率・低反射なメタサーフェスの作製

今回、50THz帯の高屈折率・低反射なメタサーフェスの作製には、東京工業大学ナノテクノロジープラットフォーム（現マテリアル先端リサーチインフラ）の技術相談と技術代行を利用した。

厚さ100nmの誘電体メンブレンの表と裏の両面へ正方形金属パッチを周期的に多数配置した構造の作製のため、“両面同時電子ビーム露光法”を新たに構築した。“両面同時電子ビーム露光法”は(a)-(f)の6つの工程からなる。(a)まず、厚さ100nmのSiNxメンブレンを準備した。今回の試作では、面積10mm×10mmのSiフレームに支持された、面積3mm×3mmのSiNxメンブレンの市販品(Norcada製)を使用した。作製中や実験中のメンブレンの破損を防ぐため、メンブレンの取り扱い用の金属製の治具を特注で作製し使用した。(b)スピコートによりメンブレンの表面と裏面に片面ずつレジストを塗布した。レジストにはポリメチルメタクリレート(PMMA)を使用した。表面と裏面それぞれで膜厚が約100nmとなるように塗布の条件を設定した。(c)電子ビームによりレジストを露光した。図3は露光に使用した東京工業大学ナノテクノロジープラットフォーム（現マテリアル先端リサーチインフラ）の電子ビーム露光装置 JEOL 製 JBX-6300SJ である。SiNxメンブ

レンが極薄のため、メンブレンの表面側からの電子ビームの照射のみで、メンブレンの表と裏の両面のレジストを表裏対称なパターンで同時に露光した。また、SiNxメンブレンが極薄のため、電子の散乱の影響（近接効果）が少ないと考えられるため、露光のドーズ量の補正は行っていない。(d)現像により、メンブレンの表と裏の両面に格子状のレジストパターンを作製した。現像液にはメチルイソブチルケトン(MIBK)とイソプロパノール(IPA)を使用した。(e)電子ビーム蒸着により、SiNxメンブレンの表面と裏面に片面ずつ厚さ50nmのAuを成膜した。SiNxとAuの密着度を向上させるため、接着層として厚さ5nmのTiを使用した。(f)リフトオフにより、メンブレンの表と裏の両面のレジストパターンを除去し、メンブレンの表と裏の両面に正方形Auパッチを周期的に作製した。

図4(a)に作製したメタサーフェスの写真を示す。図4(b)と(c)にそれぞれ作製したメタサーフェスの表面と裏面を電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM)で観察した画像を示す。FE-SEMの観察にはユーザ機関の東京農工大学の共用設備の日立製FE-SEM S-4500を使用した。図4(b)と(c)の灰色の箇所は金属のAu、黒色の箇所は誘電体のSiNxである。図4(b)と(c)より、構築した“両面同時電子ビーム露光法”で、SiNxメンブレンの表と裏の両面に対称に正方形Auパッチを周期的に作製できていることを確認した。作製した正方形Auパッチの1辺の長さ l は約1200nm、配置間隔 s は約200nmである。



図3 作製に使用した東京工業大学の電子ビーム露光装置

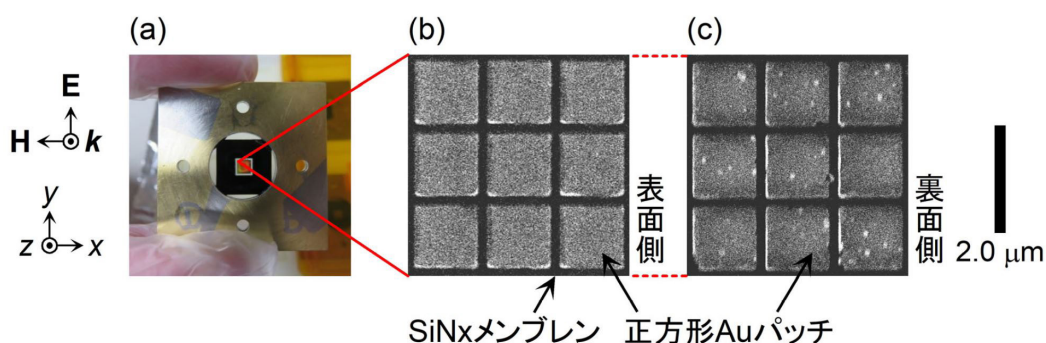


図4 作製した高屈折率・低反射なメタサーフェスの (a) 表面の写真, (b) 表面のFE-SEM像, (c) 裏面のFE-SEM像



4. 高屈折率・低反射なメタサーフェスの実験

図5 (a) に作製したメタサーフェスの屈折率, 反射率, 透過率を示す. 図5 (b) に比誘電率, 比透磁率を示す. 作製したメタサーフェスの反射率と透過率は, フーリエ変換赤外分光法 (FT-IR) の顕微測定 (日本分光製 FT/IR-6600, 顕微ユニット IRT-1000) で測定した. 屈折率, 比誘電率, 比透磁率は, FT-IR で測定した反射率と透過率から導出した [8]. 50THz で, 屈折率 5.9, 反射 16.7%, 透過率 26.9%, 比誘電率 11.7, 比透磁率 3.0 を確認した. 厚さ 100nm の SiNx メンブレンの表と裏の両面に作製した正方形 Au パッチにより, 50THz 帯で磁性の共振を実現し, 1.0 よりも高い値の比透磁率を実現した. 比誘電率と

比透磁率を同じ周波数で高値かつ同値に近づけることで, 50THz 帯で高屈折率・低反射な光学特性を実現した.

表1[4][7]に, これまでに報告されてきた高屈折率メタサーフェス [9][10][11][12][13][14][15][16][17][18][19][20]をまとめている. 発表年, 周波数, メタアトムの構造, 作製の有り無し, 屈折率の実部, 屈折率の虚部, 性能指数 (屈折率の実部/屈折率の虚部), 比誘電率, 比透磁率, 反射率, 透過率を比較している. [9][10][11][12][13][14][15][16]で報告された高屈折率メタサーフェスは, メタサーフェスの誘電性を制御して比誘電率を高い値に設計することで, 高屈折率を設計していた. 一方で磁性の制御はしておらず比透磁率は低いままだったため, 比誘電率と比透磁率の大きな差があり, インピーダンス整合が取れず高い反射が起きていた. そのような中, 2017年に東京農工大学の研究グループは0.3THz帯で誘電性だけでなく磁性も制御して,

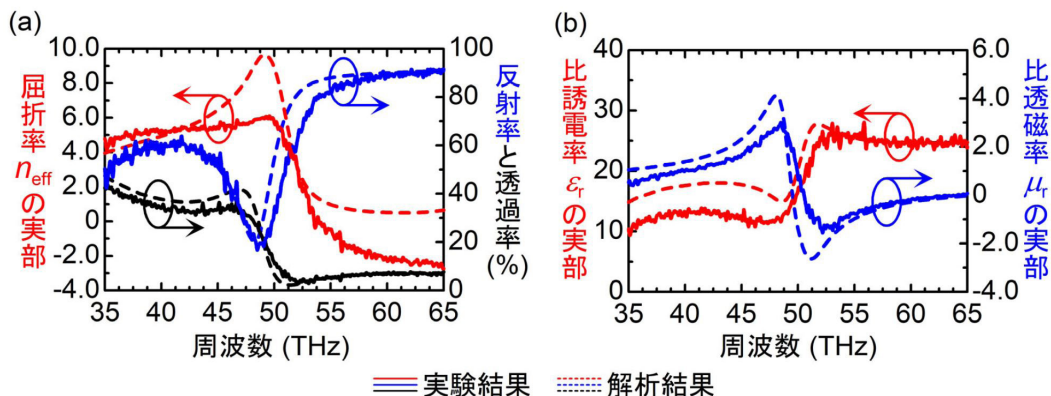


図5 作製した高屈折率・低反射なメタサーフェスの周波数特性
(a) 屈折率の実部, 反射率, 透過率 (b) 比誘電率の実部, 比透磁率の実部

表1 高屈折率メタサーフェスの比較表 [4][7]

発表年	周波数 (THz)	メタアトムの構造	作製の有り無し	屈折率の実部	屈折率の虚部	性能指数 (屈折率の実部/虚部)	比誘電率	比透磁率	反射率 (%)	透過率 (%)	
2011	0.522	I構造金属パッチ	有り	24.34 (実験値)	約2.0* (実験値)	>10 (0.23 THz)	約400* (実験値)	約1.0* (解析値)	-	-	[9]
2013	0.48	I構造金属パッチ	有り	18.4 (実験値)	約19* (実験値)	約0.9* (実験値)	-	-	-	<10* (実験値)	[10]
2015	2.14	I構造金属パッチ	無し	67.9 (解析値)	約28* (解析値)	約2.4* (解析値)	-	-	>90* (解析値)	<10* (解析値)	[11]
2015	0.315	Z構造金属パッチ	有り	14.36 (実験値)	約6.2* (実験値)	約2.3* (実験値)	約90* (解析値)	約0.74* (解析値)	>90* (解析値)	<10* (実験値)	[12]
2016	0.75	交差I構造金属パッチ	無し	約80* (解析値)	約24* (解析値)	約3.4* (解析値)	約240* (解析値)	約4.5* (解析値)	>90* (解析値)	<10* (解析値)	[13]
2017	0.84*	窓型金属パッチ	無し	約45 (解析値)	約21* (解析値)	約2* (解析値)	-	約4.3* (解析値)	>90* (解析値)	<10* (解析値)	[14]
2018	0.438	一層金属リング	無し	91.3 (解析値)	約52* (解析値)	約1.8* (解析値)	2623 (解析値)	-	-	-	[15]
2020	1.1*	両面金属リング	無し	約30* (解析値)	約24* (解析値)	約1.3* (解析値)	約-51* (解析値)	約5.3* (解析値)	約88* (解析値)	<10* (解析値)	[16]
2014	0.84	両面正方形ループスロット	無し	3.0** (解析値)	0.15** (解析値)	19** (解析値)	2.2** (解析値)	3.8** (解析値)	2.5** (解析値)	79** (解析値)	[17]
2017 農工大	0.309	両面ベアカット金属ワイヤー	有り	6.66 (実験値)	0.123 (実験値)	54 (実験値)	7.01 (実験値)	6.07 (実験値)	1.16 (実験値)	91.8 (実験値)	[2]
2017 農工大	0.31	両面ベアカット金属ワイヤー	有り	12.3 (実験値)	0.884 (実験値)	14.0 (実験値)	15.5 (実験値)	9.6 (実験値)	5.13 (実験値)	73.1 (実験値)	[6]
2017	0.827	両面窓型金属パッチ	有り	約6.8* (解析値)	約0.29* (解析値)	約24* (解析値)	約8.1* (解析値)	9.75 (解析値)	約5* (解析値)	約42* (0.71 THz) (実験値)	[18]
2018	1.17	両面ベアカット金属ワイヤー	無し	15.37 (解析値)	約1.9* (解析値)	約8.0* (解析値)	約15* (解析値)	約3.5* (解析値)	約20* (解析値)	約67* (解析値)	[19]
2020 農工大	2.97	両面ベアカット金属ワイヤー	有り	5.88 (実験値)	1.57 (実験値)	3.75 (実験値)	6.73 (実験値)	5.03 (実験値)	1.3 (実験値)	35.7 (実験値)	[20]
2021 農工大	50.1	両面正方形金属パッチ	有り	5.9 (実験値)	2.4 (実験値)	2.5 (実験値)	11.7 (実験値)	3.0 (実験値)	16.7 (実験値)	26.9 (実験値)	[8]

*マークは文献内のグラフから読み取った値を示す

**マークは文献内の図をシミュレーションして求めた値を示す

比誘電率と比透磁率の両方を高値かつ同値に設計し、高屈折率・低反射なメタサーフェスを実現した [2]。このメタサーフェスの誘電体膜の厚さは $50\mu\text{m}$ であり、作製にはエッチング技術を使用した。さらに 2021 年には、東京農工大学の研究グループは周波数が 10 倍高く波長が 10 分の 1 となる 3.0THz 帯での高屈折率・低反射なメタサーフェスも実現した [20]。このメタサーフェスの誘電体膜の厚さは $5.0\mu\text{m}$ であり、作製にはスーパーインクジェットプリンターを使用した。

より高周波数で短波長な赤外域の 50THz 帯でも高屈折率・低反射なメタサーフェスを実現するには、厚さわずか 100nm の誘電体膜の表と裏の両面に、数 100nm オーダーのサイズの微細な金属構造を作製する必要があった。



5. まとめ

今回、東京工業大学ナノテクノロジープラットフォーム（現マテリアル先端リサーチインフラ）の微細加工の技術相談と技術代行による多大なご支援により、50THz 帯で高屈折率・低反射なメタサーフェスを実現した。新たに構築した“両面同時電子ビーム露光法”により、厚さ 100nm の SiN_x メンブレンの表と裏の両面に、大きさ $1200\text{nm}\times 1200\text{nm}$ の正方形 Au パッチを配置間隔 200nm で周期的に配置した構造を作製した。実験で、作製したメタサーフェスが、50THz で屈折率 5.9、反射率 16.7%、透過率 26.9%、比誘電率 11.7、比透磁率 3.0 を有することを確認した。

今回実現したメタサーフェスをメタレンズアンテナなどへ展開することで、熱ふく射の指向性を制御して、エネルギーハーベスティングやサーマルマネジメントなどへ応用できる可能性がある。熱ふく射の指向性制御によりパワー密度を高めることができれば、既存の赤外域のレクテナ発電の発電効率 [21][22][23] の向上などが期待できる。また、今回のメタサーフェスの実現を通して構築した“両面同時電子ビーム露光法”は、100nm オーダーの極薄の誘電体膜の表裏両面の微細加工を可能にし、これまででない応用の開拓が期待できる。



6. 謝辞

本研究の一部は、JST さきがけ (JPMIPR18I5)、JSPS 科研費基盤研究 (B) (21H01839)、JSPS 科研費挑戦的研究 (萌芽) (21K18712)、JSPS 特別研究員奨励費 (21J22822) の助成を受けたものである。本研究の素子は、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業（現マテリアル先端リサーチインフラ）(F-21-IT-006, F-21-IT-031) の支援を受けて、東京工業大学微細加工プラットフォームで作製したものです。東京工業大学 宮本 恭幸先生、梅本 高明

先生に深く感謝申し上げます。4章の表1の作成について、研究室の2020年度修士課程修了生の遠藤 孝太氏に心より感謝いたします。



参考文献

- [1] J.-J. Greffet, R. Carminati, K. Joulain, J.-P. Mulet, S. Mainguy, and Y. Chen, *Nature* **416**(4876), 61–64 (2002).
- [2] K. Ishihara and T. Suzuki, *Infrared, Millimeter, Terahertz Waves* **38**(9), 1130–1139 (2017).
- [3] K. Sato and T. Suzuki, *Nanophotonics* **12**(13), 2537–2544 (2023).
- [4] T. Suzuki, K. Endo, J. Kim, K. Tsuruda, and M. Sekiya, *Opt. Express* **29**(12), 18988–19000 (2021).
- [5] K. Endo, M. Sekiya, J. Kim, K. Sato, and T. Suzuki, *Appl. Phys. Express* **14**(8), 082001 (2021).
- [6] 鈴木健仁, *応用物理* **86**(10), 897–902 (2017).
- [7] 鈴木健仁, *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* **7**(2), 55–59 (2021).
- [8] H. Asada and T. Suzuki, *The Third International Symposium on Frontiers in THz Technology*, Fr1-4, Nov. 2022.
- [9] M. Choi, S. H. Lee, Y. Kim, S. B. Kang, J. Shin, M. H. Kwak, K.-Y. Kang, Y.-H. Lee, N. Park, and B. Min, *Nature* **470**(7334), 369–373 (2011).
- [10] H. T. Yudiantira, A. P. Tenggara, V. D. Nguyen, T. T. Kim, F. D. Prasetyo, C.-G. Choi, M. Choi, and D. Byun, *Appl. Phys. Lett.* **103**(21), 211106 (2013).
- [11] Z. Liu, C. Zhang, S. Sun, N. Yi, Y. Gao, Q. Song, and S. Xiao, *Opt. Mater. Express* **5**(9), 1949–1953 (2015).
- [12] S. Tan, F. Yan, L. Singh, W. Cao, N. Xu, X. Hu, R. Singh, M. Wang, and W. Zhang, *Opt. Express* **23**(22), 29222–29230 (2015).
- [13] X. Jing, W. Wang, R. Xia, J. Zhao, Y. Tian, and Z. Hong, *Appl. Opt.* **55**(31), 8743–8751 (2016).
- [14] X. Jing, X. Gui, R. Xia, and Z. Hong, *IEEE Photonics J.* **9**(1), 1–7 (2017).
- [15] B. Fang, L. Chen, Y. Deng, X. Jing, and X. Li, *RSC Adv.* **8**(40), 22361–22369 (2018).
- [16] L. Jiang, B. Fang, Z. Yan, J. Fan, C. Qi, J. Liu, Y. He, C. Li, X. Jing, H. Gan, and Z. Hong, *Opt. Laser Technol.* **123**, 105949 (2020).
- [17] Q. Yang, J. Gu, D. Wang, X. Zhang, Z. Tian, C. Ouyang, R. Singh, J. Han, and W. Zhang, *Opt. Express* **22**(21), 25931–25939 (2014).
- [18] L. Singh, R. Singh, and W. Zhang, *J. Appl. Phys.* **121**(23), 233103 (2017).
- [19] X. Gui, X. Jing, P. Zhou, J. Liu, and Z. Hong, *Appl. Phys.*

- B 124(4), 68 (2018).
- [20] H. Asada, K. Endo, and T. Suzuki, *Opt. Express* **29**(10), 14513–14524 (2021).
- [21] A. Sharma, V. Singh, T. L. Bougher, and B. A. Cola, *Nanotech.* **10**(12), 1027–1032 (2015).
- [22] P. S. Davids, R. L. Jarecki, A. Starbuck, D. B. Burckel, E. A. Kadlec, T. Ribaud, E. A. Shaner, and D. W. Peters, *Nanotech.* **10**(12), 1033–1038 (2015).
- [23] P. S. Davids, J. Kirsch, A. Starbuck, R. Jarecki, J. Shank, D. Peters, *Science* **367**(6484), 1341–1345 (2020).
- ^c 東京農工大学 工学研究院 先端電気電子部門,
^d 東京農工大学 工学府 電子情報工学専攻 朝田 晴美 ^{c,d},
^a 東京農工大学 工学研究院 先端電気電子部門
^bJST 創発研究者 鈴木 健仁 ^{a,b})



【お問い合わせ】

マテリアル先端リサーチインフラ

東工大ナノ構造造形支援事業

☎ 03-5734-2572

E-mail miya@ee.e.titech.ac.jp

ホームページ

http://www.pe.titech.ac.jp/qnerc/nano_support/index-j.html