

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 17 日現在

機関番号：24201

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26246035

研究課題名(和文) プラズマ複合構造体の生成と超広帯域周波数分散特性による診断

研究課題名(英文) Generation of plasma-composite structures and their diagnostics with extraordinarily-wide frequency dispersions

研究代表者

酒井 道 (Sakai, Osamu)

滋賀県立大学・工学部・教授

研究者番号：30362445

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 31,100,000円

研究成果の概要(和文)：mmから $\mu\text{m}$ スケール等のマルチスケールの粒子と、それらの粒子を含んでメタマテリアル効果等を合わせた複合体を設計・作製し、電磁波に対して高機能性を持つ荷電粒子集団「メタプラズマ」を実現した。そしてその集合体診断において、kHz～マイクロ波～赤外光にわたる周波数スペクトル取得を行った。最終的にはマルチスケール性をもち超広帯域周波数分散スペクトルを示すメタプラズマが実現した。

研究成果の概要(英文)：We proposed and experimentally achieved “meta-plasmas,” which include various size levels of particles and/or constituents as flexible composites with charges, and they exhibit functional outputs as electromagnetic-wave media. We performed diagnostics of frequency spectra from kHz to infrared rays, and verified the concept of meta-plasmas with multiscale properties and extraordinarily-wide frequency dispersions.

研究分野：プラズマ工学、メタマテリアル科学

キーワード：プラズマ メタマテリアル マイクロ波 テラヘルツ/赤外材料・素子 微粒子

### 1. 研究開始当初の背景

現在あるいは近未来のフォトニクスやエレクトロニクスは、無機材料に対するトップダウン型プロセスによる微細化、そして有機材料などによるボトムアップ型プロセスによる微小デバイス作製により進められているが、それらは、すでにある元素・物質の単独物性あるいは組み合わせに限定される場合が多い。その観点を打ち破るために、提出された提案の一つが“メタマテリアル”であり、ここでは波動媒質として波長よりも十分小さな離散的微細構造により従来物質では実現できない特性を設計しようというものである。しかし、固体物質で構成するメタマテリアルは静的で柔軟性が欠け、例えば結晶・多結晶・アモルファスと、ナノからミリメートルのマルチスケール性の中で特性が変わる従来型材料の多彩な振る舞いの実現への観点が十分ではない。その点を改善する目的で、我々は“プラズマ・メタマテリアル”の提案を行い、マイクロ波からミリ波帯においての動的特徴やパラメータ制御性に優れたユニークな特徴を実証してきたが、前述のマルチスケール性の観点ではまだ十分ではない。

これまで研究されてきている固体材料のマルチスケール性は、例えば広周波数領域にわたる誘電率分散の変化に現れている。理想的な結晶で考えると、光領域での電子振動、赤外光域での結合振動、マイクロ波域での振動と、結晶構造が電子・原子・原子間結合というマルチスケール性をもち、それぞれのレベルでの自由度が多彩な固体・材料物性とその応用分野の広がりをもたらしている。本研究では、メタマテリアルのような離散的な空間構造を持つ構造体にも、それぞれのスケールでの設計自由度を残しながら、総体としての特性を実現することを目指す。そこでは、プラズマやイオン結晶を代表とする電荷を帯びた粒子(メタマテリアル構造も付与)の集合体の特性を取り込み、電気的中性による安定性を保ちながら、電子/イオンといった組み合わせにとどまらない荷電粒子集合体を“プラズマ複合体=メタプラズマ”と呼ぶこととする。

このような観点では、これまで研究されてきたプラズマ中のクーロン結晶 (Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L804 (1994)他) が関連している。そこでは、低圧プラズマ中の微粒子が負に帯電して数 100  $\mu\text{m}$ の間隔で結晶状に整列する。最近、このクーロン結晶をテラヘルツ帯のフォトニック結晶とみなそうという理論検討が報告された (J. Appl. Phys. **114**, 113305 (2013))。この場合、微粒子に働く力を外部パラメータにより変化させると、結晶状構造の可変性が確保できるが、その維持には真空チャンバーが求められる。一方、我々は、フォトニクス等に应用可能な材質を作り出したい。今一度、プラズマあるいはプラズマ・メタマテリアルがどのような誘電率分散を持

っているかを見直してみると、その誘電率分散は電子の密度に強く依存する。結果として、プラズマは、誘電率が可変であることは素晴らしいが、その周波数分散は電子プラズマ周波数周辺に限定される。この状況を変えてより多彩な振る舞いを可能とするためには、荷電粒子の質量・密度・束縛性を自由にし、さらにプラズマ内部に構造を作り出すことが望まれる。前者について、我々はプラズマ中の電子を負イオンに置き換える効果、さらに正負イオンを荷電微粒子に置き換える効果を確認してきた。また、構造部の自由度の確保としては、我々はプラズマ・メタマテリアルの検討を行ってきた。本研究のポイントとして、それらを統合するとき効果が有効に合成されるかどうかを見極めていく。

### 2. 研究の目的

マイクロ波領域で実証したプラズマ・メタマテリアルの概念を、イオン性あるいは荷電微粒子性の集合体についての広義のプラズマとして発展させ、このより広範なプラズマ複合体 (“メタプラズマ”) により高機能光学・電子物性制御媒質を生成する (図 1)。動的特徴かつパラメータ制御の自由度の多さにより、通常の無機・有機媒質を超えうる物質を設計可能であると期待される。マルチスケール性を持つ構造により、その特性はキロヘルツ領域から光領域に至る超広範囲周波数分散を示し、逆にそのような分散特性を診断することでそれぞれの状態を分析し、設計した物性値の実現度合いを検証する。

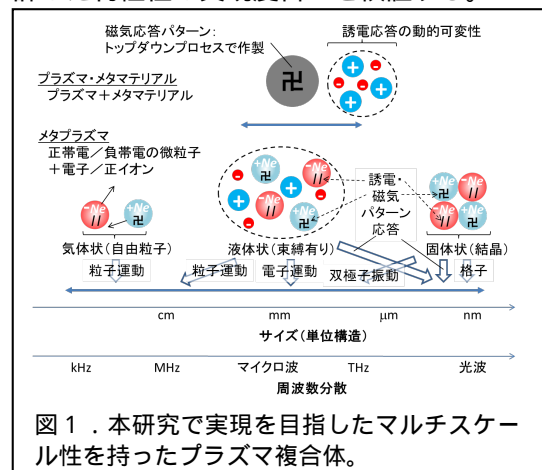


図 1. 本研究で実現を目指したマルチスケール性を持ったプラズマ複合体。

### 3. 研究の方法

各スケールでの粒子を設計・作製し、電荷を付与する装置作製を行い、メタプラズマとしての集合体診断は kHz 帯・MHz 帯・マイクロ波帯・THz 帯・赤外光域で切れ目なく周波数スペクトルを取得することで可能となる。より具体的には、以下の 3 つの項目について年次ごとに計画を遂行し、最終的にはマルチスケール性をもち超広帯域のスペクトルを示すメタプラズマ (可能ならば、気体状・液体状・固体状のすべての形態で) を実現する。

マイクロ波帯プラズマ・メタマテリアルの発展（粒子化設計と空間配置パターン効果の確認） プラズマ・メタマテリアル研究（研究代表者）からの発展

$\mu\text{m}$ サイズ微粒子の高機能化（作製・修飾および電荷付与法の開発） 従来研究（研究分担者・研究代表者）の微粒子への機能性付加

高機能化微粒子の集合体の特性診断  
より

#### 4. 研究成果

マイクロ波帯プラズマ・メタマテリアル  
まずmmサイズの粒子に対して曲面に処理可能なインクジェット装置を導入し、1cmオーダーの球に対して2重分割リング共振器構造の作製にインクジェット装置システム（PIJ-25NSET-PIJD/ID10）により成功した。その設計指針を得るため、平板上への2重分割リング共振器構造の作製とプラズマ中での特性診断を行った。プラズマ中でも2重分割リング共振器によりもたらされる負の透磁率領域は、周波数として0.2 GHz未滿のずれにとどまることがわかった[雑誌 14（以下、項目5の番号で示す）]。ここでは、



図2. パラメータ空間における動作点の跳躍現象[雑誌 15]。

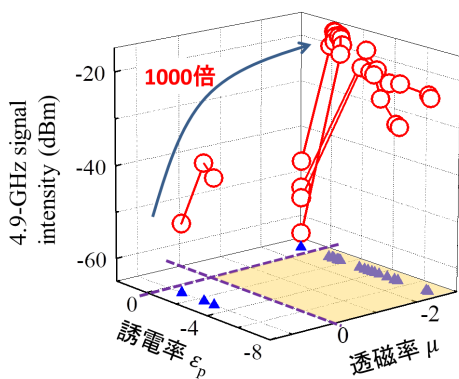


図3. 動作点の跳躍現象（図2）とともに観測される2倍高調波の生成[雑誌 10, 14, 15]。

低圧力下で生成されるプラズマ中の不純物レベルを低減するために、ターボ分子ポンプ（TG350F）を活用した。

次に、負の透磁率をもたらすメタマテリアルとプラズマの複合体の特性を調べた。用いたのは、周波数2.45 GHzで、数100 Wまでの高出力マイクロ波である。これまでに、負の透磁率状態の空間にプラズマを生成すると、負の誘電率状態となるようにプラズマが

高密度化することがわかっていたが、その様子を実験観測と理論予測で詳細に調べ、履歴現象を伴う非線形動力学過程であることがわかった（図2）。これにより、パラメータ空間上での動作点は飛躍して遷移する[雑誌 15]とともに、同時に非線形光学過程である2倍高調波（4.9 GHz）生成が大きく促進することが明らかとなった（図3）[雑誌 10, 14, 15]。このように、従来別々に調べられてきた2つの非線形過程を同時に観測することができた。

また、負の屈折率の値を詳細に調べたところ、プローブ特性により導出した負の誘電率値による評価により、負の屈折率値が飽和傾向にあることがわかった[雑誌 1, 5]。この飽和値は、構造全体が周期構造を取ることから生じる波数の上限値の存在とほぼ一致した。すなわち、測定値の正確性が裏付けられるとともに、プラズマ複合体のパラメータと波動現象が整合して存在していることが明らかとなった。

#### $\mu\text{m}$ サイズ微粒子の高機能化

数 $\mu\text{m}$ オーダーの粒子に対しての帯電およびその集団周波数スペクトル測定を行った。真空中での電子ビーム照射により、好感度表面電位計（323/6000B-8）による診断、有機溶媒中での泳動測定のいずれにおいても、負の帯電が確認され、数カ月にわたって電荷を保持するエレクトレット性を示すことがわかった。また、個々の微粒子の帯電量の微視的定量化にも、走査型プローブ顕微鏡システム（AFM5000II-AFM5100N）を用いて成功した。そして、帯電した粒子群について、有機溶媒中で kHz オーダーの低周波周波数特性を観測したところ、理論予測である程度説明できる周波数スペクトル（ドルーデ型分散に誘電体効果が加味された形状）の観測に成功した。

さらに、外観としての構造形成についても下記の成果を得た。帯電微粒子を有機溶媒中に分散させて外部電界を印加すると、電界方向と逆方向に分かれてドリフトしながら、お互いに影響を及ぼし合っって集団としての回転現象を示した。また、空気中における攪拌操作により、粒子が凝集して超粒子を形成することが見出された。すなわち、正負の帯電集合体としての集団現象の観測に成功した。さらに、メタマテリアル効果を付与するために、微粒子表面にナノ Ag 粒子ネットワークの形成にも成功した（図4）[雑誌 12]。

このナノ Ag 粒子ネットワークは、フラクタル性を持つネットワーク形状を示す。この赤外光応答性を測定したところ、Ag ナノ粒子やその他の背景媒質とは明らかに異なる吸収スペクトルを観測した（図5）。これは、赤外光領域にて構造由来の共鳴現象によるものと思われ、負の誘電率・透磁率現象に関連するメタマテリアル効果と推測される[雑誌 12]。

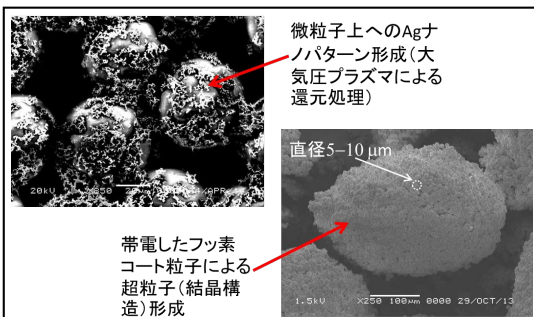


図4．微粒子上へのAgナノパターン形成(大気圧プラズマによる還元処理)。(右)帯電微粒子上のフッ素コート粒子による超粒子(結晶構造)形成。

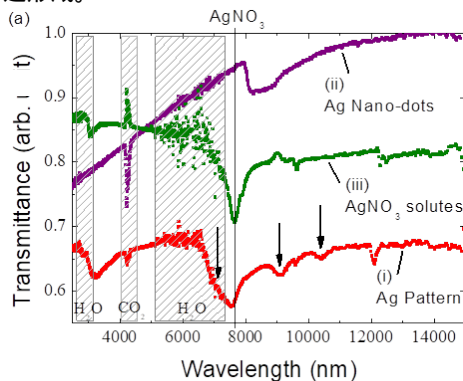


図5．ナノAg粒子ネットワークの赤外光応答性[雑誌12]。

このような帯電粒子集団の挙動解析を数値的に行うことを目指して、外場によって帯電粒子に働く力、帯電粒子どうしの相互作用力、流体抗力、熱揺らぎ力など考慮して、帯電粒子の運動方程式の定式化を行った。それらに基づき、現象のシミュレーションをするため、数値計算プログラムの開発し、数 Hz ~ 数 MHz の交流電場下における帯電粒子懸濁液の挙動について、理論モデルの詳細化も行った。

高機能化微粒子の集合体の特性診断  
上記の通り、我々のプラズマ複合体“メタ

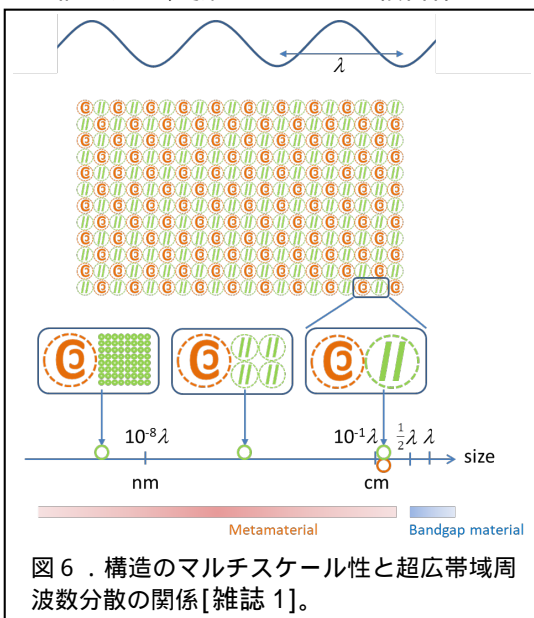


図6．構造のマルチスケール性と超広帯域周波数分散の関係[雑誌1]。

プラズマ”により、振舞は異なるものの、kHz帯・マイクロ波帯・赤外光領域の3つの周波数帯で特徴的な分散関係を得ることができ、この結果を得るにあたっては、構造が実現しうる/含むうるマルチスケール性として cm~数μm~数100 nm オーダーの重要性を示した。以上のように、本研究で当初目標とした超広帯域の周波数分散が制御された形で実現した。

このような結果をより一般化するために、マルチスケール性と特性周波数帯域の関係を広く電磁メタマテリアルと音波メタマテリアルについて調べ、我々のプラズマ複合体で得られた実験データを分析した(図6)[雑誌1]。すると、形成されている構造の特性長は波長の数分の1以下という上限はあるものの、下限値についてはほぼ際限がなく効果が発揮されることがわかった。

### 5．主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 16 件)

1. O. Sakai, A. Iwai and Y. Omura, “Invariance of parameter identification in multiscales of meta-atoms in metamaterials,” *Advances in Physics: X* 3, 338-355 (2018) (<https://doi.org/10.1080/23746149.2018.1433551>).
2. O. Sakai, A. Iwai, Y. Omura, S. Iio and T. Naito, “Wave propagation in and around negative-dielectric-constant discharge plasma,” *Physics of Plasmas* 25, 031901-1-8 (2018) (<https://doi.org/10.1063/1.5009413>).
3. A. Bambina, S. Yamaguchi, A. Iwai, S. Miyagi and O. Sakai, “Valid size of plasma-metamaterial cloaking monitored by scattering wave in finite-difference time-domain code,” *AIP Advances* 8, 015309-1-10 (2018) (<https://doi.org/10.1063/1.5006960>).
4. Y. Mino, A. Hasegawa, H. Shinto, and H. Matsuyama, “Lattice-Boltzmann simulation of flow of oil-in-water emulsion through coalescing filter: Effect of filter structure,” *Chemical Engineering Science* 177, 210-217 (2018) (DOI: 10.1016/j.ces.2017.11.027)
5. I. Adamovich, S. D. Baalrud, A. Bogaerts, P. J. Bruggeman, M. Cappelli, V. Colombo, U. Czarnetzki, U. Ebert, J. G. Eden, P. Favia, D. B. Graves, S. Hamaguchi, G. Hieftje, M. Hori, I. D. Kaganovich, U. Kortshagen, M. J. Kushner, N. J. Mason, S. Mazouffre, S. Mededovic

- Thagard, H.-R. Metelmann, A. Mizuno, E. Moreau, A. B. Murphy, B. A. Niemira, G. S. Oehrlein, Z. Lj Petrovic, L. C. Pitchford, Y.-K. Pu, S. Rauf, O. Sakai, S. Samukawa, S. Starikovskaia, J. Tennyson, K. Terashima, M. M. Turner, M. C. M. van de Sanden and A. Vardelle, "The 2017 Plasma Roadmap: Low temperature plasma science and technology," *Journal of Physics D: Applied Physics* 50, 232001-1-46 (2017) (<https://doi.org/10.1088/1361-6463/aa76f5>).
6. O. Sakai, S. Yamaguchi, A. Bambina, A. Iwai, Y. Nakamura, Y. Tamayama and S. Miyagi, "Plasma metamaterials as cloaking and nonlinear media," *Plasma Physics and Controlled Fusion* 58, 014042-1-10 (2017) (<http://iopscience.iop.org/article/10.1088/0741-3335/59/1/014042/meta>).
7. Y. Mino, H. Shinto, S. Sakai, and H. Matsuyama, "Effect of internal mass in the lattice Boltzmann simulation of moving solid bodies by the smoothed-profile method," *Physical Review E* 95, 043309-1-10 (2017) (DOI: 10.1103/PhysRevE.95.043309).
8. O. Sakai, Y. Nakamura, A. Iwai and S. Iio, "Negative-permittivity plasma generation in negative-permeability space with high-energy metamaterial," *Plasma Sources Science and Technology* 25, 055019-1-10 (2016) (<http://iopscience.iop.org/article/10.1088/0963-0252/25/5/055019/meta>).
9. T. Naito, S. Yamaura, Y. Fukuma and O. Sakai, "Radiation characteristics of input power from surface wave sustained plasma antenna," *Physics of Plasmas* 23, 093504-1-9 (2016) (<http://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.4962225>).
10. A. Iwai, Y. Nakamura and O. Sakai, "Enhanced generation of a second harmonic wave in a composite of metamaterial and microwave plasma with various permittivities," *Physical Review E* 92, 033105-1-8 (2015) (<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevE.92.033105>).
11. O. Sakai, K. Nobuto, S. Miyagi and K. Tachibana, "Analysis of weblike network structures of directed graphs for chemical reactions in methane plasmas," *AIP Advances* 5, 107140-1-6 (2015) (<http://dx.doi.org/10.1063/1.4935059>).
12. O. Sakai, Y. Hiraoka, N. Kihara, E. Blanquet, K. Urabe and M. Tanaka, "Microdischarge-induced decomposition of ammonia and reduction of silver ions for formation of two-dimensional network structure," *Plasma Chemistry and Plasma Processing* 36, 281-294 (2016) (DOI: 10.1007/s11090-015-9664-3).
13. T. Fukasawa, S. Noguchi, H. Shinto, H. Aoki, S. Ito, and M. Ohshima, "Effects of physicochemical properties of particles and medium on acoustic pressure pulses from laser-irradiated suspensions," *Colloids and Surfaces A* 487, 42-48 (2015) (<http://dx.doi.org/10.1016/j.colsurfa.2015.09.051>).
14. A. Iwai, Y. Nakamura, A. Bambina and O. Sakai, "Experimental observation and model analysis of second-harmonic generation in a plasma-metamaterial composite," *Applied Physics Express* 8, 056201-1-4 (2015) (doi:10.7567/APEX.8.056201).
15. Y. Nakamura, A. Iwai and O. Sakai, "Nonlinear properties of negative-permittivity microwave plasmas embedded in metamaterial of macroscopic negative permeability," *Plasma Sources Science and Technology* 23, 064009-1-8 (2014) (doi:10.1088/0963-0252/23/6/064009).
16. 新戸浩幸, "混相流における毛管架橋力の重要性," *混相流* 28(4), 458-465 (2014) (<http://doi.org/10.3811/jjmf.28.458>).

[学会発表](計 16 件)

1. O. Sakai, A. Bambina, A. Iwai, S. Yamaguchi, Y. Kabe and S. Miyagi, "Regulation of microwave propagation in space and frequency domains by plasma-metamaterial composite," *The 8th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics* (Incheon, Korea, July 25-28, 2017) 招待講演.
2. O. Sakai, "High-Density Plasma Generation in Low-Pressure Metamaterial Space," *AVS 64th International Symposium & Exhibition* (Tampa, USA, October 29th - November 3th, 2017) 招待講演.
3. O. Sakai, "High-Density Plasma Generation in Low-Pressure Metamaterial Space," *The 26th International Toki Conference* (Toki, Japan, December 5-8, 2017) 招待講演.
4. O. Sakai, "Plasma photonic crystals and dusty plasma photonic crystals," *18th Workshop on*

- Fine Particle Plasmas* (Toki, Japan, December 11 - 12, 2017) 招待講演.
5. O. Sakai, "Smallness, dielectric constant and wave frequency in plasmas," *9th International Workshop on Microplasmas 2017* (Garmisch-Partenkirchen, Germany, June 6-9, 2017)
  6. O. Sakai, A. Iwai, Y. Nakamura, A. Bambina, S. Yamaguchi and S. Miyagi, "Plasma metamaterials as novel nonlinear and cloaking media," *the 43rd EPS Conference on Plasma Physics* (Leuven, Belgium, July 4-8, 2016) 招待講演.
  7. 酒井道, "プラズマを用いた高エネルギーメタマテリアルとその発展性," KIT シンポジウム「電磁メタマテリアルとその応用」(Kyoto, Japan, November 25, 2016) 招待講演.
  8. A. Bambina, A. Iwai, S. Miyagi and O. Sakai, "Microwave Propagation in Plasma Layer Surrounding Metallic Monopole Antenna," *10th European Conference on Antennas and Propagation* (Davos, Switzerland, April 11-15, 2016).
  9. A. Iwai, A. Bambina, Y. Nakamura and O. Sakai, "Generation of Second Harmonic Wave in Plasma-Metamaterial Composite Operated in Microwave Range," *10th European Conference on Antennas and Propagation* (Davos, Switzerland, April 11-15, 2016).
  10. O. Sakai, A. Iwai, A. Bambina, S. Yamaguchi and S. Miyagi, "Plasma media created in abnormal-permeability metamaterial space," *8th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials* (Nagoya, Japan, March 6-10, 2016) 招待講演.
  11. O. Sakai, "Negative-permittivity plasma generation in negative-permeability metamaterial space," *68th Annual Gaseous Electronics Conference* (Hawaii, USA, October 12-16, 2015) 招待講演.
  12. 新戸浩幸, "コロイド・界面から生体ソフト界面への展開," 第23回LBM研究会(福岡, 2015年6月12日~2015年6月12日) 招待講演.
  13. O. Sakai, A. Iwai and Y. Nakamura, "Plasma metamaterials, and their reconfigurable and nonlinear properties," *9th European Conference on Antennas and Propagation* (Lisbon, Portugal, April 12-17, 2015).
  14. A. Iwai, Y. Nakamura and O. Sakai, "Second-harmonic generation in composite of microwave plasma and cm-order metamaterial," *67th Annual Gaseous Electronics Conference* (Raleigh, U.S.A., November 2-7, 2014).
  15. O. Sakai, Y. Nakamura and A. Iwai, "Experimental observation of electron density bifurcation in plasma-metamaterial composites in microwave range," *67th Annual Gaseous Electronics Conference* (Raleigh, U.S.A., November 2-7, 2014)
  16. O. Sakai, "Extraordinary wave media based on plasmas and metamaterials," *International Union of Materials Research Societies - The 15th IUMRS International Conference in Asia* (Fukuoka, Japan, August 24-30, 2014), 招待講演.
- 〔図書〕(計 0 件)
- 〔産業財産権〕  
出願状況(計 0 件)  
取得状況(計 0 件)
- 〔その他〕  
ホームページ  
滋賀県立大学工学部電子システム工学科  
ネットワーク情報工学分野のページ  
<http://www.e.usp.ac.jp/~edtw/index.html>
6. 研究組織
- (1) 研究代表者  
酒井道 (SAKAI, Osamu)  
滋賀県立大学・工学部・教授  
研究者番号: 3 0 3 6 2 4 4 5  
  
研究者番号:
  - (2) 研究分担者  
新戸浩幸 (SHINTO, Hiroyuki)  
福岡大学・工学部・教授  
研究者番号: 8 0 3 2 4 6 5 6
  - (3) 連携研究者  
(該当無し)