

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：17201

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K20912

研究課題名（和文）応力発光の新展開―量子ビームを用いたアトミックスケール発光機構の研究

研究課題名（英文）Study of the atomic-scale in-situ process of mechanoluminescence

研究代表者

鄭 旭光（Zheng, Xu-Guang）

佐賀大学・理工学部・教授

研究者番号：40236063

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：応力発光に潜むメカニズムは、今まで応用研究を中心に行われてきて、メカニズムの解明は、本格的な新学術領域展開のカギとなる。この現状を打破する実験手段として、ミュオンスピン緩和に着目した。本研究は核磁気をもつ発光中心の希土類イオン、及び欠陥にトラップされた発光中心由来の電子両方の様子と相互作用の動的過程を検出・究明できると着想し、ミュオンビームを使って初期実験を行った結果、ミュオンスピン緩和が応力発光性と強い相関があることを発見し、後続研究の指針を得た。さらに酸化物応力発光体の単結晶成長に成功し、同時に応力発光低次元結晶において新規強磁性を発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

応力発光物質は、低い力学刺激でも発光することから、バイオイメージング、応力分布可視化・破壊予知・亀裂診断など、人工骨から橋梁やタンクなどの巨大建造物の健全性診断まで適用でき、中長期に入った社会インフラ等の保守点検および安全・安心な社会を支える要素技術として強く期待されている。

しかし、今までの研究は応力発光の性能向上と材料開発を中心に行われてきており、これら画期的な応力発光性に潜むメカニズムは、実質上、現象的な考察しか行われていない。メカニズムの解明は、本格的な新学術領域展開のカギとなる。

研究成果の概要（英文）：Mechanoluminescence (ML) is luminescence induced by mechanical stimuli. It is a promising technology, but its mechanism remains largely unknown. We believed that the key for the ML mechanism in a representative material SAO lies in the dynamic interplay between the rare-earth luminescent centers and the crystal defects during mechanical excitation. Meanwhile, the movement of the dislocations may influence the trapping of muons implanted. We thus conceived the idea of studying the dynamic interplay of luminescent centers and crystal defects at an atomic scale using muSR. We have found strong correlation of the muSR spectra to the ML property, which opened the route for future studies. We have successfully grown transparent crystals of SAO, which is optimum for future experiments. Besides, we also discovered unexpected ferromagnetism in the ML materials.

研究分野：物性物理学

キーワード：応力発光 ミュオンスピン緩和 発光過程の動的解析 強磁性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

機械的な作用(力学エネルギー)によって発光する現象の観察は古く、1605年に Francis Bacon の氷砂糖等の破断に伴う弱い発光現象の報告に遡る。これらの破壊発光は、破壊時の静電気高圧による破断面クラックでのガス放電に起因するとされ、Triboluminescence として知られている。一方、結合破断まで達しない非破壊領域での機械発光の研究は、一部のゴムの微弱発光(I. Grabec, J. Polym. Sci. Pol. Lett. 1974)、または純良単結晶での放射線照射欠陥の結晶学的研究に限定され(G. Aletta, Phys. Status. Solid A)、発光強度いずれも微弱であった。

上記機械発光初報告から 400 年も経った 1999 年に、産総研徐グループと申請者の共同研究によって、弾性変形域でも強発光する応力発光材料 $\text{Eu}:\text{SrAl}_2\text{O}_4$ (SAO) 等が見出され、応力分布などの工学的に応用できることが示された [Direct view of stress distribution in solid by mechanoluminescence, CN Xu, T Watanabe, M Akiyama, XG Zheng, Applied Physics Letters 74(17)2414-2416(1999); Artificial skin to sense mechanical stress by visible light emission, CN Xu, T Watanabe, M Akiyama, XG Zheng, Applied Physics Letters 74(9)1236-1238(1999)]。更に、最近圧電体母体に元素置換した $\text{Li}_x\text{NbO}_3:\text{My}$ (LNO) において極微な力に対しても高感度で発光する現象を見出し [$\text{LiNbO}_3:\text{Pr}^{3+}$: A Multipiezo Material with Simultaneous Piezoelectricity and Sensitive Piezoluminescence, D Tu, CN Xu, A Yoshida, M Fujihala, J Hirotsu, XG Zheng, Advanced Materials 29(22)1606914(2017)]、検出閾を持たない高感度高効率な応力弾性発光(piezo-luminescence)と圧電性(piezo-electricity)両方を同時に有するマルチピエゾ機能が可能となってきている。

「応力発光」と名付けられたこれら応力発光物質は、低い力学刺激でも発光することから、バ イオイメージング、応力分布可視化・破壊予知・亀裂診断など、人工骨から橋梁やタンクなどの巨大建造物の健全性診断まで適用でき、中高期に入った社会インフラ等の保守点検および安全・安心な社会を支える要素技術として強く期待されている。中でも、圧電体を母体材料とした応力発光材料は、さらに様々な電子制御機能が可能になることから、電気・力・光の多元変換が可能というポテンシャルをもつことで、応力発光の新展開が期待されており、諸外国からも強い関心を持たれており、追隨の動きが活発である。

しかし、今までの研究は応力発光の性能向上と材料開発を中心に行われてきており、これら画期的な応力発光性に潜むメカニズムは、実質上、現象的な考察しか行われていない。メカニズムの解明は、本格的な新学術領域展開のカギとなる。

2. 研究の目的

現象的なメカニズム論では、圧力印加時のひずみエネルギーが欠陥などにトラップされた発光中心由来の電子を励起し、発光をもたらすと想定されている。実際透過電顕で SAO 結晶において圧力印加に伴う転位の可逆的な運動を観察している。このように発光中心と格子欠陥のダイナミックな連携相互作用過程の解明が応力発光の飛躍的展開の要であると捉えることができ、申請者はアトミックスケールでの動的発光過程の研究を着想し、これを実験的に調べる方法の確立を目的とした。

3. 研究の方法

上記ダイナミックな相互作用を調べられる実験手段が非常に乏しく、これが今までのメカニ

ズム未解明の主因である。この現状を打破する実験手段として、申請者が物性研究に利用してきた量子ビームであるミュオンスピン緩和 (μ SR) がうってつけだと注目した。ミュオンは 135.53MHz/T という巨大磁気回転比を持つため極めて敏感な磁針となると共に(原子の核磁気の検出により原子の運動も検出できる) 内部磁場の大きさや揺らぎを実時間(時間分解能 $\sim 0.4\text{-}70$ ナノ秒)で捕らえることにより物質の様々な性質をアトミックスケールで明らかにする微視的な手法である。正ミュオン自身の拡散運動により結晶中の欠陥トラップなども探知できる上、負ミュオンとの比較により正確に評価できる。本研究は核磁気をもつ発光中心の希土類イオン、及び欠陥にトラップされた発光中心由来の電子両方の様子と相互作用の動的過程を検出・究明できると着想した。本研究は2種の代表的な SAO ($\text{Eu:SrAl}_2\text{O}_4$) と LNO ($\text{Li}_x\text{NbO}_3\text{:M}_y$) 系列応力発光物質を用いて実験方法の有効性を探索した。

4. 研究成果

本研究は核磁気をもつ発光中心の希土類イオン、及び欠陥にトラップされた発光中心由来の電子両方の様子と相互作用の動的過程を検出・究明できると着想し、ミュオンビームを使って初期実験を行った結果、ミュオンスピン緩和が応力発光性と強い相関があることを発見し、詳細動的過程を検出する研究の指針を得た。さらに酸化物応力発光体の単結晶成長に成功し、ミュオン実験による応力発光の動的過程の本格化に成功している。同時に応力発光低次元結晶において予期していない新規強磁性を発見した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 X. G. Zheng, I. Yamauchi, A. Urata, A. Koda, S. Nishimura, J. Nakamura, R. Kadono, C. N. Xu	4. 巻 2021-6
2. 論文標題 muSR study of two typical elasticoluminescence materials series of SrAl ₂ O ₄ :Eu and LiNbO ₃ :Pr	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 KEK Progress Report	6. 最初と最後の頁 60-61
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 X. G. Zheng, I. Yamauchi, A. Urata, A. Koda, S. Nishimura, J. G. Nakamura, R. Kadono, and C. N. Xu	4. 巻 2022-7
2. 論文標題 Investigation of Muonium Formation and Magnetism in Mechanoluminescent (SrEu)Al ₂ O ₄	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 KEK Progress Report	6. 最初と最後の頁 58-59
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 鄭旭光, 山内一広, 幸田章宏, 西村昇一郎, 中村惇平, 徐超男
2. 発表標題 μSRを用いた応力発光のメカニズム研究
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鄭旭光, 山内一宏, 浦田明宏, 幸田章宏, 西村昇一郎, 中村惇平, 門野良典, 徐超男
2. 発表標題 μSR study of two typical elasticoluminescence materials series of SrAl ₂ O ₄ :Eu and LiNbO ₃ :Pr
3. 学会等名 J-PARC/MUSE成果報告会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山内一宏, 鄭旭光, 浦田明宏, 幸田章宏, 西村昇一郎, 中村惇平, 門野良典, 徐超男
2. 発表標題 Investigation of muonium formation and magnetism in mechanoluminescent (SrEu)Al2O4
3. 学会等名 J-PARC/MUSE成果報告会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	山内 一宏 (Yamauchi Ichihiro) (60444395)	佐賀大学・理工学部・准教授 (17201)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------