

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 26 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560381

研究課題名(和文)タリウム系化合物が示す局所的な巨大光誘起変形現象の起源解明とその応用

研究課題名(英文)Origin of light-induced giant expansion in thallium compounds and its application

研究代表者

沈 用球 (Shim, YongGu)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：20336803

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：3元タリウム化合物の局所的な巨大光誘起変形現象について、その変形量の定量的な評価を行った。光損傷閾値より2桁小さい光強度で、マイクロメートルオーダーの変形量を示すことを明らかにし、時間応答性の結果と併せて、本現象がマイクロメートルサイズを対象とした光駆動機構への応用が可能であることを示した。シミュレーション結果との比較から、3元タリウム化合物の小さな熱伝導率が変形の局所性に寄与していることがわかった。タリウム化合物の構造相転移温度で、電子準位構造の変化が生じていたことから、相転移による物性変化が光誘起変形の巨大性に関与している可能性が考えられる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to make quantitative evaluation of the photo-induced local-expansion of the surface relief in thallium ternary compounds. The investigated samples exhibit micrometer order expansion with short response time at low pump beam power of about two orders less than the optical damage threshold. These results indicate that the thallium ternary compounds are promising materials for new light-driven systems. From the result of the simulated calculation for the photo-induced expansion, it is suggested that the local-expansion is due to small thermal conductivity in the thallium compounds. The electronic band structures of some thallium compounds display an abrupt change around the temperatures of the structural phase transitions. It is reasonable to suppose that the giant photo-induced expansion in the thallium ternary compounds is related to the change of physical properties by the structural phase transitions.

研究分野：半導体光物性

キーワード：半導体光物性 光物性 物性実験 物性基礎論

1. 研究開始当初の背景

光はそのエネルギー、時間、空間の制御が容易なことから、現在の科学における大きな研究分野を形成している。その中でも、光エネルギーの他エネルギー形態への変換は、光を有効利用する上で重要な研究分野であり、光から電気、化学、力学的エネルギー等への変換を利用する研究が盛んに行われている。しかし、完全な光エネルギー利用にはまだ遠く、材料や手法上の問題から、いまだ、着目されていない光エネルギー利用法が存在している。このような、陽の目を浴びていない技術、材料の開拓は、人類の将来の生存基盤を確保する上で最も重要な課題であると言っても過言ではない。

我々は、3元タリウム化合物 (TlInSe_2 , TlInSe_2 , TlGaSe_2 等) が持つポテンシャルに着目し、光学特性、電気的特性、バンド構造等の基礎物性的な研究過程において、光照射により光スポット付近の試料表面が局所的に著しく変形(隆起)する光誘起変形現象を発見した。この現象は光学顕微鏡で確認できるほどの巨大な隆起であると同時に、光のオン・オフを繰り返すことで、同様の変形を繰り返す可逆的な応答を示していた。このような光弾性エネルギー変換の可能性を示す実験結果が種々得られていることから、これらの現象を支配する機構を系統的に解明すべく本研究計画を立案し取り組んだ。

2. 研究の目的

本研究は、新たに発見された「巨大光誘起変形現象」の原因を解明し、その知見を、光弾性エネルギー変換という新しい光エネルギー変換技術に結実させる試みであり、光エネルギーの新しい利用法を提案し、光エネルギー変換材料分野に新しい研究領域を拓くものである。

そこで、本研究では、まず、巨大光誘起変形現象の定量的な評価から、照射した光と変形量の関係を定量的に明らかにすることを目的として研究を行った。そして、光誘起変形現象による、光エネルギー利用の新研究領域開拓や応用展開への基礎として、本現象の起源と要因を考察するとともに、本現象を利用した光駆動機構としての性能と可能性を示すことを目的として研究を遂行した。

3. 研究の方法

(1) レーザー光照射による光誘起変形特性計測

研究対象である3元タリウム化合物の吸収波長である408nmの半導体レーザー(CW光、最大93.5mW/mm²)をポンプ光として、試料表面に照射し、ポンプ光スポット付近に生じた隆起変形を共焦点レーザー変位計により定量的に評価した。また、ポンプ光のパワーやスポット形状が試料表面の変形量や形状に与える影響を調べた。さらに、断続的なポンプ光を照射させることで、光誘起変形の再現

性や過渡応答性を測定し、本材料の光駆動機構用材料としての性能を調査した。

(2) 光誘起変形現象のシミュレーション計算
有限要素法によるシミュレーション計算により、光熱変換により発生した熱による熱膨張が本現象の起源と仮定して、試料表面温度や隆起変形量のポンプ光強度・スポット径依存性を見積った。そして、実験結果との比較を行うことで、本現象の起源について考察を行った。

(3) 分光エリプソメトリによる光学定数測定
光誘起変形現象解明には、熱による物性変化の影響が重要な鍵となる。ここでは、電子-フォノン相互作用の影響を調べるため、温度変化に伴う光学定数(誘電率、屈折率)や電子準位構造の変化を調べた。測定には、温度可変の分光エリプソメーターを用いた。測定エネルギー領域は0.75-6.0eVで、測定温度範囲は100-400Kである。また、タリウム化合物の光学異方性を考慮して誘電率スペクトルを測定した。

4. 研究成果

(1) 光誘起変形現象について、その変形量や形状の定量的な評価を行った。その結果、 TlInSe_2 , TlGaSe_2 , TlSe_2 等でポンプ光中心付近に凸状の隆起が確認できた。図1に鎖状構造を持つ TlInSe_2 , TlGaSe_2 , TlSe_2 におけるポンプ光のスポット中心の隆起変形量(膨張量: Δh_{max})のポンプ光強度依存性を示す。図に示されるように、その変形量は、照射光強度と共に増大し、数マイクロメートルオーダーに達していることがわかる。また、図2には、各タリウム化合物について、試料厚(h)から求めた、試料厚方向の膨張率(変形率: $\Delta h_{\text{max}}/h$)のポンプ光強度依存性を示す。いずれの試料も100mW/mm²以下のポンプ光強度で、10⁻³オーダーという、非常に大きな変形率を示していた。これらの3元タリウム化合物の光損傷閾値は、およそ数W/mm²程度であることを確認しており、光損傷閾値より2桁も小さな値で、数マイクロメートルの変形量、10⁻³の変形率を示す局所的な隆起変形が実現でき、さらに高強度のレーザー光照射により、より大きな変形を示す可能性があることを明らかにした。この隆起変形を用いることで、マイクロメートルサイズの物質の駆動が可能になることが予想される。

次に、光誘起変形現象について、光照射のON/OFFに対する応答性を調べた。図3には、 TlInSe_2 におけるポンプ光スポット中心の試料表面の膨張量(Δh)について、ポンプ光のONとOFFを繰り返した結果を示す。この結果から、光照射の連続的なONとOFFの繰り返しに対して、再現性の良い可逆的な応答を示すことがわかった。また、ON時、OFF時ともに、変形の飽和時間は数十秒であるが、時定数は、共に1秒以下であるため、比較的速い

時間応答性を示すことがわかった。このことから、本現象を駆動機構に用いる場合、1秒以下の時間領域で、本現象を制御可能であることがわかった。

これらの結果から、今後、本現象を用いた光駆動機構の実現が期待できる。

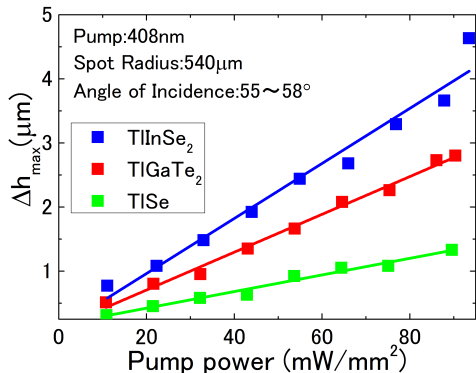


図1 光誘起変形の隆起変形量の照射光強度依存性

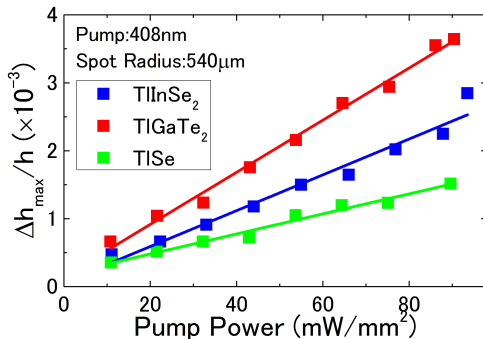


図2 光誘起変形による変形率の照射光強度依存性

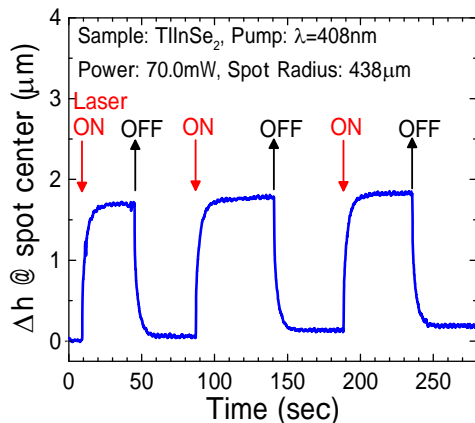


図3 断続光照射による光誘起変形の時間応答性

(2)光誘起変形現象について有限要素法によるシミュレーション計算を行い、実験結果との比較を行った。TlInSe₂に関して93.5mW/mm²のポンプ光照射時の計算結果を図4に示す。

図中のx, yはそれぞれ、鎖状構造の鎖に対して直角、平行方向を示しており、隆起変形量(ΔH)の各方向のプロファイルを示している。様々な条件の計算結果から、本現象の局所性は、タリウム化合物の小さい熱伝導率が要因のひとつであることがわかった。しかし、実験では、ポンプ光スポット中心で4.5μm程度の膨張量が観測(図1)されたことに対して、光熱変換による熱膨張を考慮したシミュレーション計算では、60nm程度の膨張となる計算結果となった。このように、実験と計算結果が2桁程度異なることから、本現象が、単なる光熱変換と熱膨張では説明できないことを示しており、他の物理現象が介在していることを示す結果であった。原因の解明には至っていないが、予想される要因としては、温度や構造相転移による弾性係数や熱伝導率等の物性値の変化が考えられる。

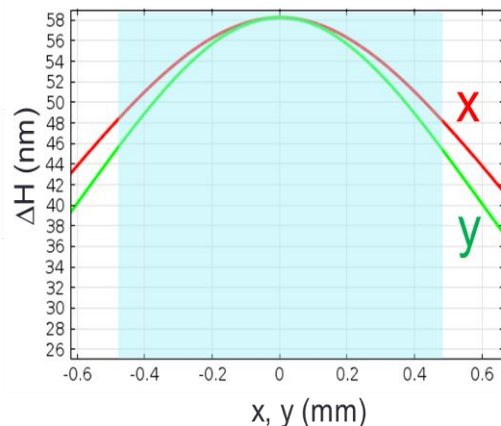


図4 光誘起変形のシミュレーション計算結果(青色はポンプ光照射領域)

(3)熱と物性間関係を探るため、光学定数(誘電率スペクトル)の温度特性から、温度変化や相転移に伴う光学遷移や電子準位構造への影響(電子-フォノン相互作用)を調べた。図5に、層状TlGaS₂のE//c* (E:電場方向、c*:層に垂直方向)偏光に対する誘電率スペクトルの実部・虚部と、標準臨界点モデル解析により求めた光学遷移(CP)エネルギー位置を矢印で示した。また、図6には、各光学遷移エネルギーの温度依存性を示した。Ep₁, Ep₄, Ep₇に関して、180Kもしくは270K付近で、温度特性に特異な変化が観測された。これらは、TlGaS₂の構造相転移温度に対応していることから、構造相転移によって、電子準位構造が変化していることを示している。今回の測定結果は、室温より低温側での結果であるが、タリウム化合物は、高温側でも構造相転移が生じている可能性があり、これに伴う物性変化が生じると考えられる。

今後の研究で、物性値と温度や構造相転移の関係を明らかにすることで、光誘起変形現象の原因解明が期待できる。

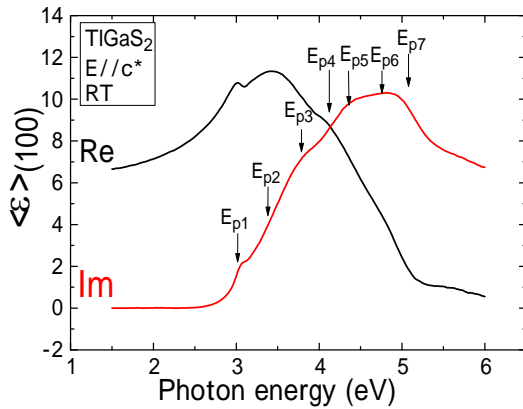


図5 TlGaS₂の誘電率スペクトルと光学遷移エネルギー（矢印）

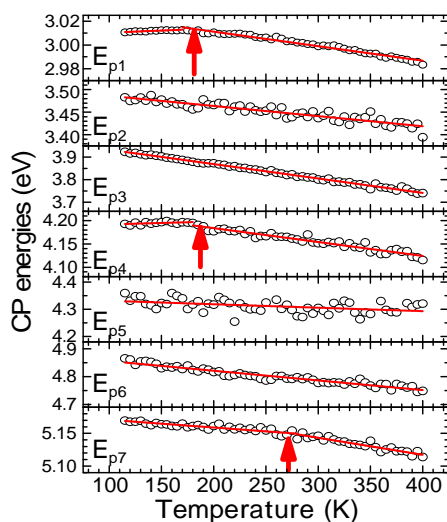


図6 TlGaS₂の光学遷移(CP)エネルギーの温度依存性（矢印で示した温度で温度特性の変化が見られた）

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2件）

Y. Shim, T. Kawabata, K. Wakita, N. Mamedov: Temperature behavior of dielectric function spectra and optical transitions in TlGaS₂, Physica Status Solidi B, 2015 (published online).
DOI:10.1002/pssb.201400342.（査読有）

T. Kawabata, Y. Shim, K. Wakita, N. Mamedov: Dielectric function spectra and inter-band optical transitions in TlGaS₂, Thin Solid Films Vol.571, 2014, 589-592.

DOI: 10.1016/j.tsf.2014.02.100.（査読有）

〔学会発表〕（計10件）

今西 慎, 沈 用球, 脇田和樹, Mamedov Nazim: 3元タリウム化合物における光誘起変形の照射光スポット形状効果, 第62回応用物理学会春季学術講演会, 2015年3月12日, 東海大学, 平塚.

M. Imanishi1, Y. Shim, K. Wakita and N. Mamedov: Measurements of photo-induced surface relief in TlInS₂, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials 2014, 2014年11月14日, 神戸大学, 神戸.

今西 慎, 沈 用球, 脇田和樹, Mamedov Nazim: 層状3元タリウム化合物における光誘起表面形状変化, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 2014年9月17日, 北海道大学, 札幌.

Y. Shim, T. Kawabata, K. Wakita and N. Mamedov, Temperature behavior of dielectric function spectra and optical transitions in TlGaS₂, 19th International Conference on Ternary and Multinary Compounds, 2014年9月3日, 朱鷺メッセ, 新潟.

M. Imanishi, Y. Shim, K. Wakita and N. Mamedov, Photo-induced change of surface relief on layered ternary thallium compounds, 19th International Conference on Ternary and Multinary Compounds, 2014年9月3日, 朱鷺メッセ, 新潟.

梅崎美亜, 沈 用球, 脇田和樹, Nazim Mamedov, TlInSe₂における巨大光誘起変形の形状および時間応答評価, 第24回光物性研究会, 2013年12月13日, 大阪市立大学, 大阪.

沈 用球, 新光駆動機構への応用が可能な局所的な光誘起変形材料の評価, 大阪府立大学・和歌山大学 工学研究シーズ合同発表会, 2013年11月18日, I-site なんば, 大阪.

梅崎美亜, 沈 用球, 脇田和樹, Nazim Mamedov, 鎖状タリウム化合物における光照射による表面形状変化とその時間応答, 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 2013年9月16日, 同志社大学, 京都.

M. Umesaki, Y. Shim, K. Wakita, and N. Mamedov, Photo-induced Change of

Surface Relief on Chain-type Thallium Compound, The 4th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies, 2013年6月19日, 石川県立音楽堂, 金沢.

梅崎美亜, 沈用球, 脇田和樹, Nazim Mamedov, 鎖状タリウム化合物における光照射による表面形状変化, 多元系機能材料研究会 2012年 年末講演会, 2012年12月1日, 新潟大学, 新潟.

〔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〕

ホームページ等

<http://www.opt.pe.osakafu-u.ac.jp/Shim.htm>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

沈用球 (SHIM, YongGu)

大阪府立大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 20336803

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

マメドフ ナジム (MAMEDOV, Nazim)

脇田 和樹 (WAKITA, Kazuki)