

研究種目：特定領域研究  
 研究期間：2007～2011  
 課題番号：19052002  
 研究課題名（和文）フラストレーションとリラクサー

研究課題名（英文）Frustration and Relaxors

研究代表者

大和田 謙二 (OHWADA KENJI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：60343935

研究分野：構造物性

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：リラクサー誘電体、中性子散乱、放射光 X 線散乱、電子顕微鏡、結晶成長、有効スピン模型、本質的不均質性、フラストレーション

### 1. 研究計画の概要

リラクサーの巨大異常誘電応答の起源をフラストレーションに起因する「不均質性」に求め、その特有の現象を記述する枠組みを構築する。この目的を達成するために、

- (1) 物質合成と新物質探索
- (2) 複数の微視的プローブの相補的利用
- (3) 空間的階層性を考慮した理論の構築を有機的に連携させて研究を行う。

リラクサーの基礎研究にブレークスルーをもたらすと共に、典型的フラストレート系の研究にも新しい視点を提供する。

### 2. 研究の進捗状況

#### (1) $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ の非弾性 X 線散乱とミニマルモデル

$\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$  の非弾性 X 線散乱と理論計算により、リラクサー状態の発現機構における B サイトランダムネスの効果を明らかにした。理論は、Polar Nano Region の発現やその電場応答を再現する事に成功した。

#### (2) 非鉛系リラクサー誘電体 $\text{Na}_{1/2}\text{Bi}_{1/2}\text{TiO}_3$ における PNR 発生機構

非鉛系リラクサー誘電体  $\text{Na}_{1/2}\text{Bi}_{1/2}\text{TiO}_3$  の純良大型単結晶育成に成功し、世界に先駆けて自発分極や圧電テンソルを決定した。また、中性子散乱実験の結果、鉛系リラクサーと共通する異方的散漫散乱とフォノン異常を観測し、これらがリラクサーに普遍的である事を示した。

#### (3) 新規リラクサー強誘電体セラミックスの

### 開発

$\text{BiFeO}_3$  セラミックスに  $\text{K}^+ \cdot 2\text{Ti}^{4+}$  複合体を導入して、ランダムネスを制御することにより、最も良好な分極特性 ( $\text{Pr}=52 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ) が得られた。この Pr 値は、鉛系も含めて、強誘電体セラミックスで最高値である。さらに 10 nm 程度の強誘電ナノドメインの可視化に成功した。このナノドメインの動的挙動に由来する誘電率の周波数分散が観測され、新規なリラクサー強誘電体の開発に成功した。

#### (4) リラクサーの時空間階層性の解明

$\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ -9% $\text{PbTiO}_3$  において散漫散乱—誘電率—スペckル散乱を同時計測し、散漫散乱と誘電率の関係、PNR が集合して sub- $\mu\text{m}$  サイズの強誘電ドメインを生成する過程、そのドメインと低周波誘電率との関係を明らかにした。一方、電子顕微鏡観察により  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ -x% $\text{PbTiO}_3$  における局所構造解析を行い、リラクサーが本質的に nano-sized 強誘電体である事を明らかにした。また、ドメインの階層構造の生成過程を観測した。これらの結果は、リラクサーにおける時空間階層性の理解への第一歩といえる。

### 3. 現在までの達成度

本班は、1. に掲げた目的に対して、2. で述べたような成果を着実に出示してきている。さらに、誘電性と磁性との交差相関にも目を向け、試料の開発・実験を行いつつある。

以上のことから、リラクサーの基礎研究にフラストレーションという視点からブレークスルーをもたらすと共に、典型的フラスト

レート系の研究にも新しい視点を提供しつつある。よって、「②おおむね順調に進展している」、と判断する。

#### 4. 今後の研究の推進方策

廣田和馬教授（大阪大学）の逝去に伴い、研究体制を以下のように変更した。

##### (1) 研究代表者の変更

H22年3月3日より、研究代表者を大和田謙二研究副主幹（日本原子力研究開発機構）に変更した。

##### (2) 研究分担者、連携研究者の変更

(1)の変更を受けて、H22年3月3日より、新たに若林裕助准教授（大阪大学）を分担者に、近藤忠教授（大阪大学）を連携研究者に迎えた。

以上の変更により、今後の大阪大学における研究アクティビティは維持されるので、研究推進の妨げとはならない。

引き続き当初の立案通り、(1) 試料合成・基礎物性測定、(2) 相補的な量子ビーム利用による実験、(3) 有効格子モデルによる計算、という3つの柱をたてて研究を行う。

#### 5. 代表的な研究成果

（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 85 件）

- ① Y. Kitanaka, Y. Noguchi, and M. Miyayama, “Oxygen-vacancy-induced 90°-domain clamping in ferroelectric  $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$  single crystals”, *Physical Review B*, **81**, 094114/1-8 (2010). 査読有
- ② K. Ohwada and Y. Tomita, “Experiment and Theory of  $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ : Antiferroelectric, Ferroelectric, or Relaxor State Depending on Perovskite B-Site Randomness” (Special Topics of JPSJ, invited), *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010), 011012/1-10, 査読有
- ③ M. Soda, M. Matsuura, K. Hirota *et al.*, “Electric Control of Spin Helicity in Multiferroic Triangular Lattice Antiferromagnet  $\text{CuCrO}_2$  with Proper-screw Order” (JPSJ Editors' Choice), *J. Phys. Soc. Jpn.* **78** (2009), 124703/1-6, 査読有
- ④ D. Fu, S. Mori *et al.*, “Relaxor  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ : A ferroelectric with multiple inhomogeneities”, *Phys. Rev. Lett.* **103** (2009), 207601/1-4, 査読有

- ⑤ Makoto Izumi, Yuji Noguchi, *et al.*, “Large electric-field-induced strain in  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ - $\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3$  solid solution single crystals”, *Applied Physics Letters*, **93**(24), 242903/1-3 (2008). 査読有

〔学会発表〕（計 232 件）

- ① Kazuma Hirota, “Frustration and Relaxors”, Joint European Japanese Conference: Frustration in Condensed Matter, (2009.5.13), Ecole Normale Lyon, Lyon, France

〔図書〕（計 4 件）

- ① 野口祐二, 「無鉛圧電セラミックス・デバイス」(養賢堂), “4. 2 欠陥制御による材料設計”, pp.116-135 (2008).

〔その他〕

- ① 新聞掲載  
科学新聞、2010年1月8日 1面  
「プロバースクリュー磁気構造マルチフェロイックスの起源 —大阪大の研究グループが明らかに—」 大阪大学理学研究科の左右田稔特任研究員、廣田和馬教授ら
- ② ホームページ  
<http://www.frustration.jp/modules/xpwiki/?Publications%2FRelaxor>