

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 8 日現在

機関番号：54101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13400

研究課題名(和文)イメージング法を用いた誘電分域や磁区構造制御の評価装置の開発

研究課題名(英文) Observation of electric and magnetic domains by using birefringence imaging system

研究代表者

三浦 陽子 (MIURA, Yoko)

鈴鹿工業高等専門学校・その他部局等・准教授

研究者番号：20456643

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、低温下で電場や応力を試料にかけ、誘起される構造相転移や磁気相転移を観測するだけでなく、その外力の大きさとともに強誘電分域や軸が変化の様子を可視化できる複屈折イメージング装置を開発した。

具体的には(1)複屈折イメージング装置の自動解析システムを開発した。(2)高電場下または応力下で、なおかつ低温で複屈折イメージング画像が取得できる試料ホルダを開発した。
その結果、量子常誘電体SrTiO₃で起こる電場誘起強誘電分域の直接観測や、等方正結晶KNiF₃に応力を印加すると低温で短軸方位が90度スイッチングすることを初めて明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Optical birefringence imaging systems demonstrate a high potential for comprehensively investigating various phase transitions. This study is observation of the optical birefringence using imaging system under electric field and stress. Firstly, we automatically obtained corrected imaging data using the correction program via a background subtraction method. Next we developed the sample holders under electric field and stress. To completely demonstrate such abilities, the temperature dependence of birefringence was measured under high electric fields in quantum paraelectric material SrTiO₃. As a result, electric field induced ferroelectric domains was observed. Furthermore, an isotopic crystal KNiF₃ was also measured under stresses. Above 3 MPa, we found that the fast-axis rotated at 90 deg. and the retardation decreased to 0 at the same temperature although there are no structural and magnetic phase transitions.

研究分野：物性物理学

キーワード：複屈折 イメージング技術 電場誘起相転移 ポッケルス効果 応力誘起複屈折 光弾性効果

1. 研究開始当初の背景

試料温度とともに変化する複屈折量には結晶構造や磁性に関する様々な情報が含まれていることがよく知られている。1970年代、レーザー光を用いた実験が精力的に行われ、複屈折に関する統一的な理解が得られた。しかしながらレーザー光を用いた実験では照射点の情報しか得られないため、複屈折に異常な振る舞いが現れても、結晶全体で変化が起こっているのか、それともドメイン形成にともなって局所的に変化が起こっているのかを区別できない問題が残った。

本研究グループでは5年程前から、磁気相転移や構造相転移をリアルタイムに、なおかつ11万ピクセルの画像情報として観察できる複屈折イメージングシステムの開発を行ってきた。

2. 研究の目的

本研究の目的はマルチフェロイクス物質を想定して、電場や応力によって誘起される構造相転移や磁気相転移現象、さらにそれらの大きさを変えることによってドメインが動く様子をリアルタイムに観察できる複屈折イメージングシステムを構築することである。そのためには電場や応力が印加できる試料フォルダの開発とともに、10-15秒間隔で連続撮影した膨大な枚数のイメージング画像を自動で補正処理できるソフトウェア開発もあわせて行い、作業の効率化を図る。

3. 研究の方法

(1) 本研究グループが開発した補正技術法では、11万ピクセルの画像情報から1ピクセル毎に入射光と出射光の8個のストークスパラメータを抽出し、その差分をとる作業が必要となる。リアルタイム観察を行うため、数千枚を超える画像データを一度に自動で補正処理を行い、複屈折量まで自動で計算できるソフトウェアを開発する。

(2) 入射光に垂直面内に高電圧を印可しながら低温で複屈折イメージング画像を取得できる高電場用試料フォルダを作製する。電場印加によって複屈折量が増加するポッケルス効果や電気カー効果を利用して、結晶の電場応答を温度変化させながら測定できるシステムも、あわせて開発する。

(3) 大きな観察視野を確保しながら、室温で印加した応力を保持できる応力用試料フォルダを作製する。応力の大きさとその空間分布の評価には、弾性体に応力を印加することによって生じる複屈折、すなわち光弾性効果を複屈折イメージング装置で測定したものを利用する。

4. 研究成果

(1) 複屈折画像の自動補正法の確立

等方性結晶 CaF_2 では、位相差はほぼゼロで温度変化しないことが分かっている。しかし図1で示すように、光学窓の影響を補正する前の位相差には、大きな温度変化が現れた。一方、光学窓の影響を補正した結果、位相差がほとんど温度変化しない結果が得られた。

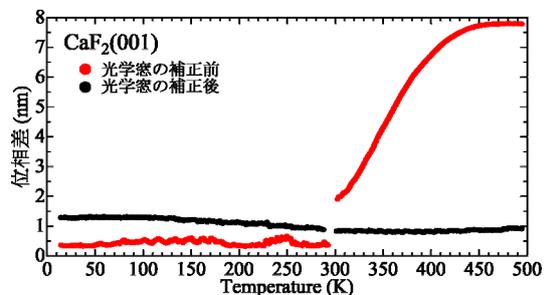


図1. CaF_2 における位相差の補正結果

この実験結果を用いて、11万ピクセルの1画像に対して100万点以上の羅列された数値データから必要な座標位置の数値(ストークスパラメータ)だけを抜きだし、実験データから光学窓による影響を差し引くソフトウェアを開発した。図2にはその補正結果の代表例を示す。さらに本研究では、数千枚の画像データを1時間で一括処理することが可能となったため、結晶構造や磁性の相転移現象の動画化にも成功した。

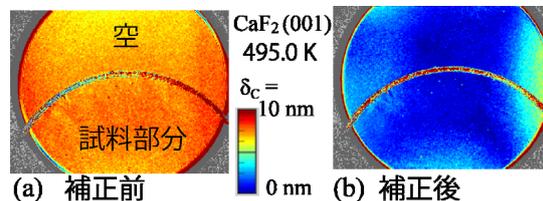


図2. 位相差画像の補正結果。

(2) 高電場用試料フォルダの開発

試料に電場を印加するには、図3(a)に示すように、0.1mm以下の薄板状に試料を成形し、その両面に電極を付ける方法が一般的である。しかしこの手法では観察視野が狭いばかりでなく、電極金属と絶縁体試料との熱収縮率が異なるため、低温で試料に応力がかかり、本質ではない複屈折が発生することが問題であった。

本研究では薄板試料の面内に電場をかけ、なおかつ試料に応力がかからない方法として、図3(b)のような電極端に試料を橋渡しして、電極間の漏れ電場を利用する方法を考えた。図3(c)には電場強度分布のシミュレーション結果を示す。この結果より、電極の厚さよりも十分に薄い試料であれば、ほぼ一様な電場が印加できることが分かった。この方法では、これまでよりも一桁以上大きな電圧が必要ではあるが、広い観察視野が

確保できるばかりでなく、試料成形等の前準備が容易となる。

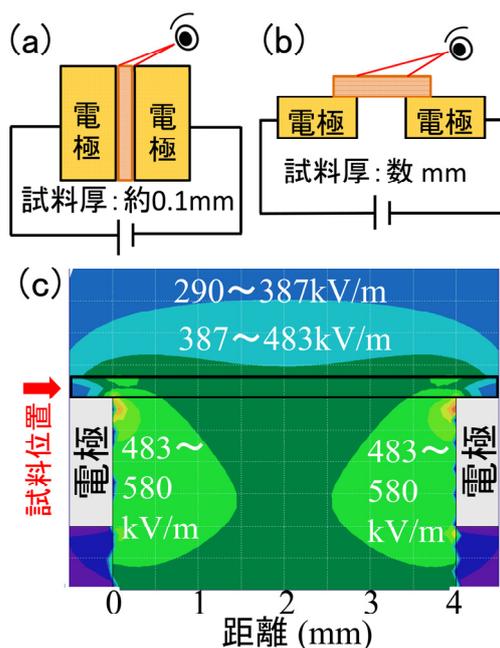


図 3. 試料への電場の印加方法。(a)通常の方法, (b)本研究で採用した方法。(c)幅 4mm の電極間に 2 kV の高電圧を印加した時の、電場分布のシミュレーション結果。

量子常誘電体 SrTiO_3 を用いた複屈折の電場応答を測定した結果を示す。図 4(a)には 0 V, 図 4(b)には 2 kV の電圧を面内に印加した時の複屈折イメージング画像を示す。ゼロ電場中では常誘電体であるため複屈折が極めて小さいが、高電場中では電場誘起強誘電転移を起こすため、強誘電分域に対応した極めて大きな複屈折が観測できた。この結果はすでに報告されている中性子散乱の実験結果とよく一致した。

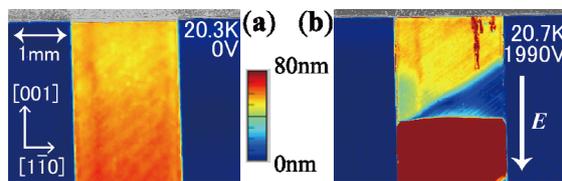


図 4. 量子常誘電体 SrTiO_3 に (a) 0 V, (b) 2 kV の電圧を面内に印加した時の複屈折イメージング画像。

(3) 応力用試料フォルダの開発

本研究では薄板試料の面内に応力をかけることによって、観察視野を確保しながら試料とクランプとの良い熱接触が保たれるように設計することで、低温下で測定可能な試料フォルダを開発した。

図 5 には立方晶反強磁性体 KNiF_3 の複屈折

イメージング画像を示す。室温かつ常圧下では、位相差は立方晶を反映して極めて小さく、短軸方位もランダムに配向していることが分かった。その試料に 3 MPa の応力を印加することによって、位相差は大きくなり、短軸方位は応力方向に垂直方向に揃うことが分かった。この結果は弾性体に応力をかけた場合に現れる応力誘起複屈折現象(光弾性効果)として説明できる。しかしながら、応力を印加しながら低温まで測定した結果、位相差が大きくなったばかりでなく、短軸方位が 90 度反転し、応力方向に揃うことが分かった。

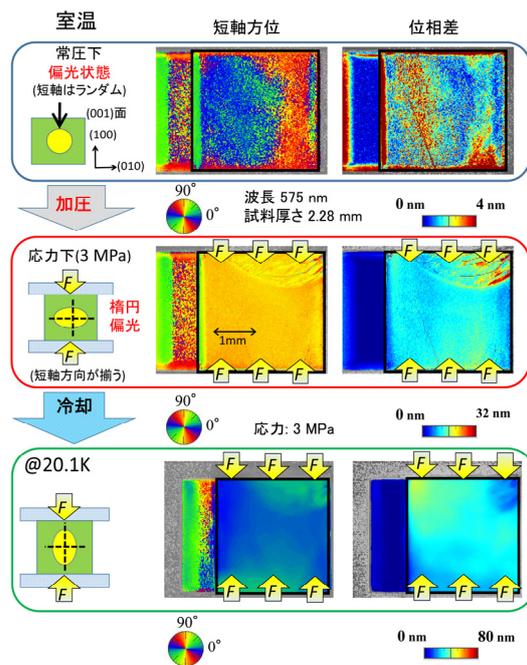


図 5. 立方晶反強磁性体 KNiF_3 の応力下複屈折イメージング画像。

図 6 には位相差と短軸方位の温度変化を示す。この結果より、反強磁性転移温度 (246 K) ではスピン偏極度の変化にともなう位相差の変化が現れたが、短軸方位は変化しなかった。さらに応力に対して磁気相転移温度は変わらないことも分かった。一方、反強磁性転移温度よりも低温領域 (200-230 K) において短軸方位が 90 度反転し、その反転温度で位相差が一旦ゼロを示す傾向が現れた。さらに応力が大きくなるにつれて、反転温度は低温側にシフトすることも分かった。すでに行われている X 線構造解析より、立方晶反強磁性体 KNiF_3 では構造相転移は現れないことが分かっている。したがって、このような劇的な短軸方位のスイッチングは結晶構造や磁性の相転移とは無関係に起こることがわかり、さらなる研究が必要と思われる。

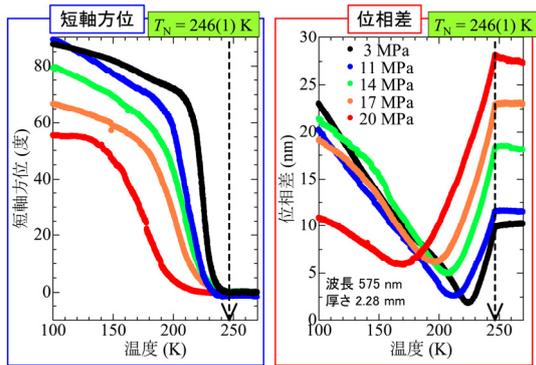


図 6. 立方晶反強磁性体 KNiF₃ の応力下における短軸方位と位相差の温度変化。

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)

① H. Manaka, T. Fukuda, and Y. Miura: Birefringence Imaging Measurements on Various Structural Phase Transitions in (C_nH_{2n+1}NH₃)₂MnCl₄ with n = 1, 2, and 3 Using Multiple Wavelengths, Journal of the Physical Society of Japan 査読有り 85 巻 2016 年 pp.124701(1)-(8) <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.85.124701>

② H. Manaka, G. Yagi, and Y. Miura: Development of Birefringence Imaging Analysis Method for Observing Cubic Crystals in Various Phase Transitions, Review of Scientific Instruments 査読有り 87 巻 2016 年 pp.073704(1)-(10) <http://dx.doi.org/10.1063/1.4958662>

[学会発表] (計 6 件)

① 三浦 陽子, 立石 浩之介, 真中 浩貴: 複屈折イメージング法を用いた光学軸のスイッチの観測 日本物理学会 2016 年秋季大会 2016 年 9 月 14 日 金沢大学(石川県金沢市)

② 真中 浩貴, 野崎 裕史, 立石 浩之介, 三浦 陽子: マルチフェロイクス物質の材料評価を目指した複屈折イメージング装置の開発 日本物理学会 2016 年秋季大会 2016 年 9 月 13 日 金沢大学(石川県金沢市)

③ 三浦 陽子, 奥村 和也, 野崎 裕史, 真中 浩貴: 複屈折イメージング技術を用いた強弾性体の応力誘起複屈折の観察 日本物理学会 2015 年秋季大会 2015 年 9 月 18 日 関西大学(大阪府吹田市)

④ 真中 浩貴, 野崎 裕史, 奥村 和也, 三浦 陽子: 複屈折イメージング法を用いた SrTiO₃ の電界誘起強誘電分域の観測 日本物理学会 2015 年秋季大会 2015 年 9 月 17 日 関西大学(大阪府吹田市)

⑤ 真中 浩貴, 福田 卓実, 多田 洋平, 立石 浩之介, 三浦 陽子: 複屈折イメージング法における測定限界の拡張技術 日本物理学会 2015 年秋季大会 2015 年 9 月 16 日 関西大学(大阪府吹田市)

⑥ 真中 浩貴, 野崎 裕史, 奥村 和也, 三浦 陽子: 高電圧印加可能な複屈折イメージング装置の開発 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会 2015 年 9 月 14 日 名古屋国際会議場(愛知県名古屋)

[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]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三浦 陽子 (MIURA Yoko)

鈴鹿工業高等専門学校・教養教育科・准教授

研究者番号: 20456643

(2) 研究分担者

真中 浩貴 (MANAKA Hirota)

鹿児島大学・学術研究院理工学域工学系・助教

研究者番号: 80359984

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし