

令和 4 年 5 月 21 日現在

機関番号：17701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K03521

研究課題名(和文) 光イメージング技術を用いたサブミクロン領域における磁性と誘電性の同時評価法の開発

研究課題名(英文) Microscopic observation of magnetic and electric states using optical imaging techniques

研究代表者

真中 浩貴 (MANAKA, Hirotaka)

鹿児島大学・理工学域工学系・助教

研究者番号：80359984

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：光イメージング測定技術を用いて、磁気状態や誘電状態の空間分布を観察する方法を開発した。反強磁性体KNiF₃では外力を印可することで複数の光学ドメインが出現し、反強磁性転移によってそれらの形状が変化することが分かった。さらに量子常誘電体SrTiO₃に外力を印可することで出現する強誘電状態も観測した。その結果[001]に外力を印可した場合、[-11-1]や[1-11]に沿ってすべり面が出現した。さらに20K以下まで温度を下げると、ほぼ一様な強誘電状態が出現した。一方[1-10]の場合、すべり面や転位が多数出現し、歪み集中も現れたが強誘電相転移は起こらなかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一般に弾性体に対して外から力を印可すると、試料内では応力や歪みに分布が現れることが知られている。磁性体や誘電体に外から力を印可した実験も数多く報告されている。しかし試料内で発生する局所的な歪みが磁性や誘電性にどのような影響を及ぼすか、それらを観察出来る手段がこれまでなかった。本研究では光イメージング技術を用いて、試料内の歪みや、それにもなう磁性や誘電性の変化を空間分布として定量的に評価できる方法を開発した。本技術を用いることで、応力下での物性研究が進歩すると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Using optical imaging measurement techniques, spatial distributions of magnetic and dielectric states were observed. In antiferromagnet KNiF₃, several optical domains appear when external force was applied, and their shapes change below the antiferromagnetic phase transition temperature. In quantum paraelectric SrTiO₃, stress-induced ferroelectric phase transition was observed by applying external force. When external force was applied along [001], slip planes appeared along [-11-1] and [1-11]. When the temperature further decreased below 20 K, almost the uniform ferroelectric state appeared. On the other hand, when external forces were applied along [1-10], many slip planes were generated, and strain concentration also appeared around the dislocations, but the ferroelectric phase transition did not occur.

研究分野：物性物理学

キーワード：光イメージング 複屈折 磁性体 誘電体

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

図1に示すように、近年、ナノ領域における原子描像とマクロ領域で現れる物性現象との橋渡し役として、サブミクロン領域における物性研究が重要となっている。しかしながらサブミクロン領域における物性測定技術はあまり進歩していない。このような背景の下、本研究では近年急速に発展してきた光イメージセンサ技術と既存の光学顕微鏡とを組み合わせることによって、サブミクロン領域における物性研究を発展させることを目標とした。

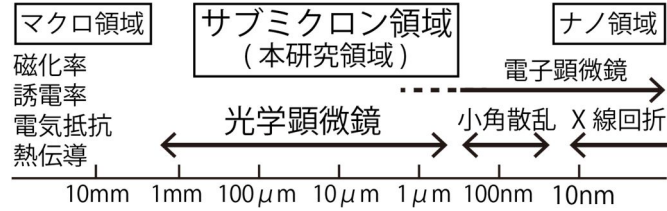


図1. 観察視野領域の概念図

2. 研究の目的

光学顕微鏡は超伝導体の磁束観察や強誘電体の分域観察で今でも活躍しているが、得られたコントラスト像から定量評価をできないことが弱点だった。そこで本研究では光イメージング測定法から、複屈折や光学主軸方位、旋光能、ファラデー回転等の同時観測によって、サブミクロン領域における磁性や誘電性を定量評価できるシステムを構築することを目的とした。

3. 研究の方法

一般に弾性体に外力を印可すると、その外力に平行な方向の歪みだけでなく、それに対して垂直な方向にも歪みが発生する。さらに外力の方向によっては垂直応力だけでなく、せん断応力も発生するため、転移が起こりやすい環境が生まれる。そこで磁性体内や誘電体内に一軸応力を発生させ、格子歪みが分布することによって生じる磁気状態や誘電状態の分布を光イメージング測定から明らかにする方法を確立した。

4. 研究成果

(1) 反強磁性体 KNiF₃ の応力下で磁気状態のイメージング測定

立方晶 KNiF₃ では 246 K で G 型反強磁性体へと磁気相転移を起こすことが知られている。そこで磁気光学効果の二次効果である磁気複屈折を用いて、磁気状態の空間分布の観察を行った。すでに開発している応力セルを用いて、[100]に沿って外力を印可することによって、垂直応力を KNiF₃ 内に発生させ、温度を下げながら光イメージング測定を行った。

図2には 24 MPa の外力を印可した時の位相差と短軸方位のイメージング像を示す。この結果から、常磁性相 (295.5 K) ではいくつかの光学ドメインが現れ、さらに転位の発生にともなって短軸方向が集中し、歪み集中が発生している様子が観測できた。さらに温度を下げると、反強磁性相 (30.1 K) でも、いくつかの光学ドメインがあらわれた。しかしながら、これらのドメインは常磁性相で見られたものとは必ずしも一致しない。すなわちこれらの光学ドメインが、結晶構造だけでなく、磁気状態も反映している可能性が分かった。

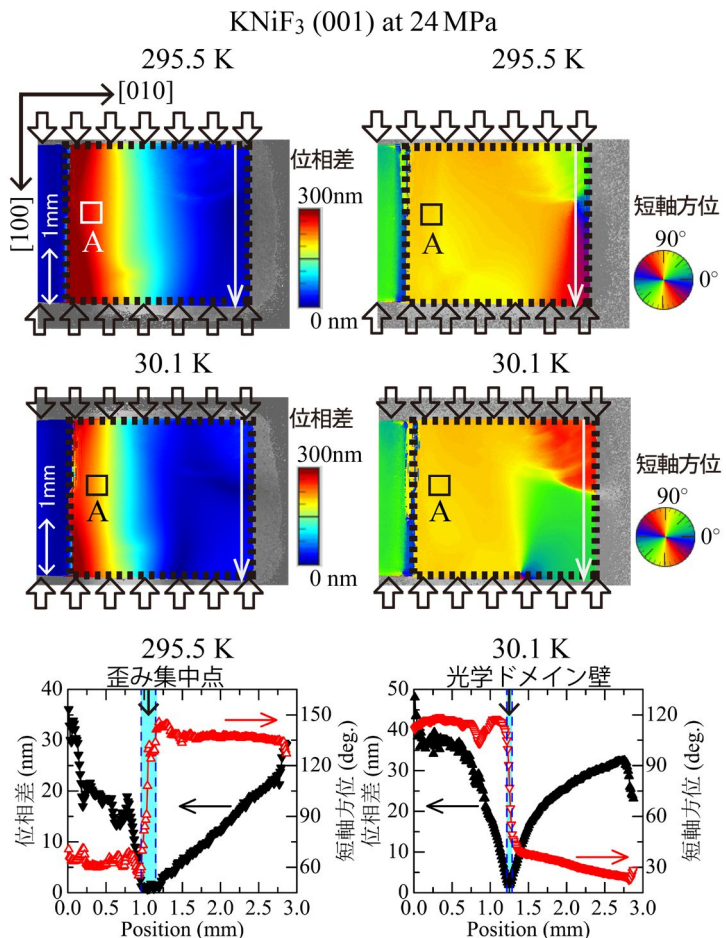


図2. KNiF₃ の外力下での複屈折イメージング像

図2に示した領域Aについて、位相差と短軸方位の温度変化を示した結果を図3に示す。位相差の温度変化を見る限り、外力を印可しても磁気相転移温度は変化しないことが分かった。さらに温度を下げていくと、位相差はほぼ一定状態から、246 K以下では減少傾向を示した。この傾向は結晶学的な歪みでは説明できないため、反強磁性状態における2体スピン相関の発達を反映しているためと考えられる。一方、短軸方位は外力によってその振る舞いが大きく異なっていた。しかしこの振る舞いは、結晶の歪みによるもので、磁気状態とは関係ないことが分かった。

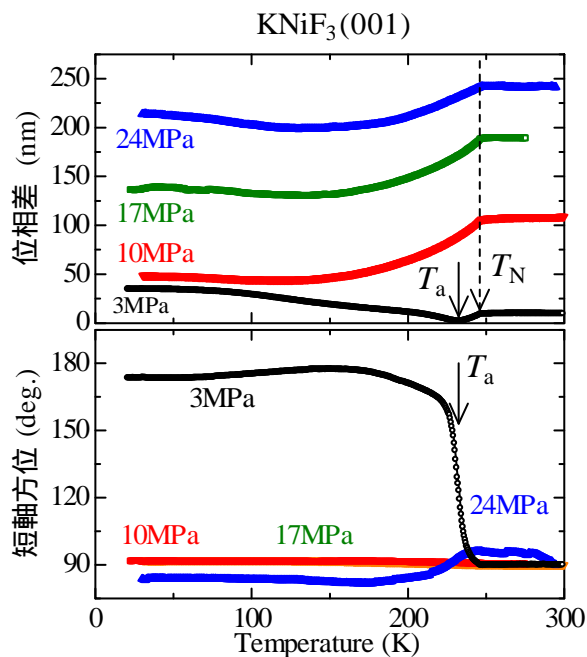


図3. KNiF₃の位相差と短軸方位の温度依存性

SrTiO₃ (110) $\sigma = 231$ MPa

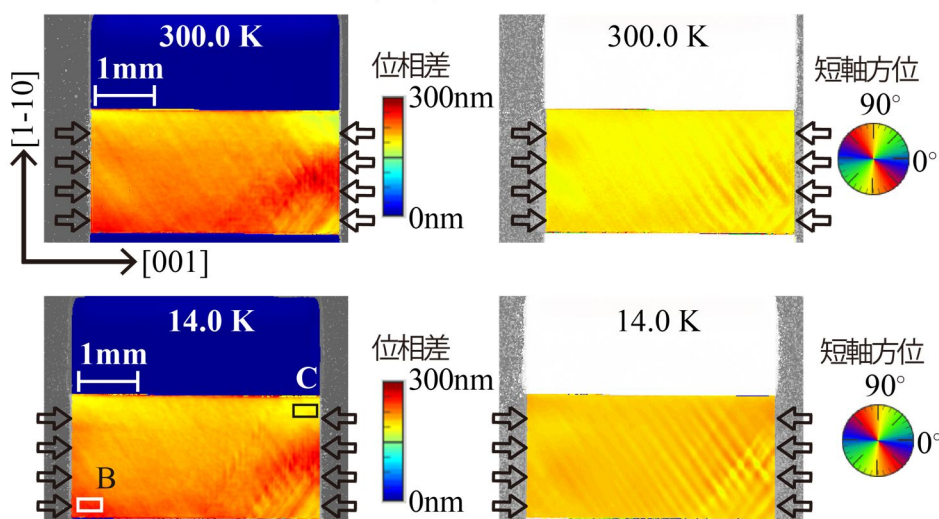


図4. SrTiO₃の[001]に沿って外力231 MPaを印可した時の位相差と短軸方位のイメージ像

(2) 量子常誘電体 SrTiO₃の応力誘起強誘電相転移

量子常誘電体 SrTiO₃では、外力を印可することによって量子ゆらぎが抑制されるため強誘電状態が出現することが知られている。しかしながら外力によって内部歪みがどのように分布しているかは分かっていない。そこで一様な強誘電状態が実現しているのか、それとも強誘電ドメインが点在しているのかを解明するため、光イメージング測定より、外力方向によって誘電状態の空間分布がどのように変化するかを明らかにした。

図4には231 MPaの外力を[001]に印可した時の、位相差と短軸方位のイメージング像を示す。このように全ての測定温度領域において、縞模様のイメージング像が得られた。この縞の方向は[-11-1]もしくは[1-11]に沿っているため、外力を印可することによって<111>に沿ってすべり面が発生している事がわかった。しかしながら図4を見る限り、ほぼ一様な誘電状態が実現し、温度を下げても

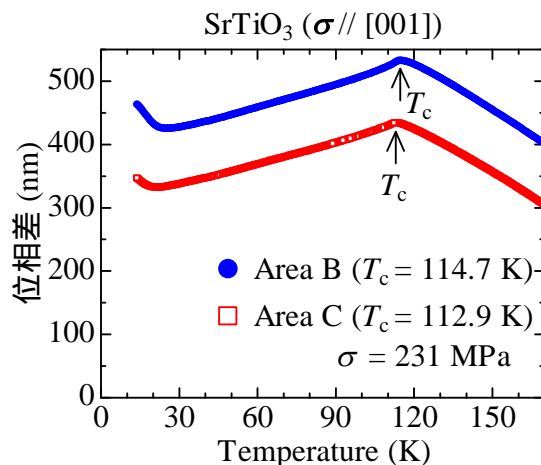


図5. SrTiO₃の[001]に外力を印可した時の位相差の温度変化

その全体像は大きく変化しないことが分かった。

図5には231 MPaの外力を[001]に印可した時の、図4に示した領域BとCにおける位相差の温度変化を示す。112~114 K付近に立方晶から正方晶への構造相転移にともなう折れ曲がりが見られた。この折れ曲がり温度を構造相転移温度(T_c)と定義した。さらに20 K付近には強誘電転移を示す位相差の曲線が立ち上がる様子も見られた。この立ち上がりの温度を強誘電転移温度と定義すると、すでに報告されている結果と一致した。

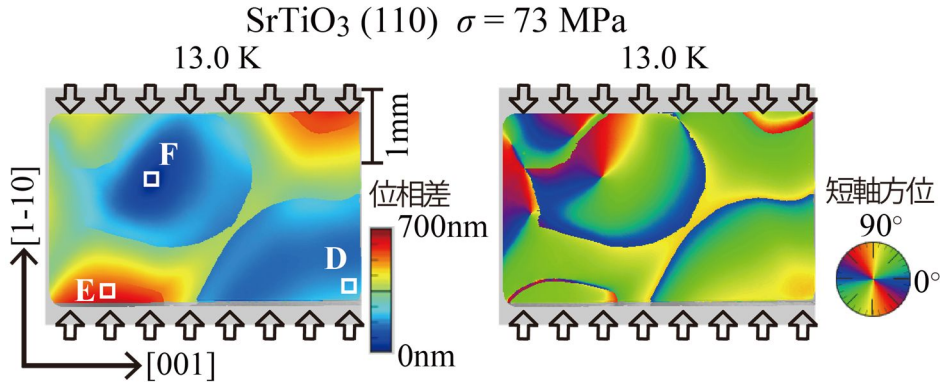


図6. SrTiO₃の[1-10]に沿って外力73 MPaを印可した時の位相差と短軸方位のイメージ像

図6には73 MPaの外力を[1-10]に印可した時の位相差と短軸方位のイメージング像を示す。転位による歪み集中や、すべり面が多数現れた。これは[1-10]に外力を印可すると、垂直応力だけでなく、せん断応力も同時に発生したためと考えられる。さらに転移による集中点近傍では、バルク試料では到達不可能な大きな歪みが発生していることも明らかにした。

図6に示した代表的な3箇所(D, E, F)を選んで、位相差と短軸方位の温度変化をまとめたグラフを図7に示す。この結果より、試料が破断するまで外力を印可したにも関わらず、これまでに報告されているような強誘電転移を示す振る舞いは観測できなかった。この原因は強誘電転移を起こす臨界値まで外力を印可することが出来なかったためと思われる。

以上のように、光イメージング技術を用いた測定手法の開発を行った。その結果、位相差や短軸方位のイメージング像から磁気状態や誘電状態の空間分布を明らかにすることができた。

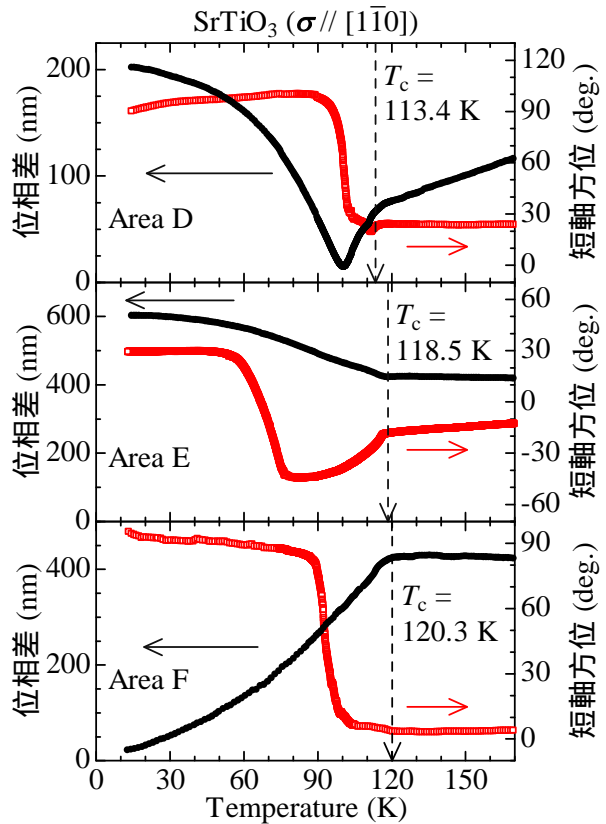


図7. SrTiO₃の[1-10]に外力を印可した時の位相差と短軸方位の温度変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Hayashida Shohei, Hagihala Masato, Avdeev Maxim, Miura Yoko, Manaka Hirotaka, Masuda Takatsugu	4. 巻 102
2. 論文標題 Magnetic order in the chemically substituted frustrated antiferromagnet CsCrF4	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174440(1)-(6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.174440	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Hiroi Masahiko, Nishiinoue Sora, Shigeta Iduru, Ito Masakazu, Koyama Keiichi, Kondo Akihiro, Kindo Koichi, Watanabe Isao, Fujii Muneaki, Kimura Shojiro, Manaka Hirotaka, Terada Norio	4. 巻 103
2. 論文標題 High magnetic field properties in Ru ₂ -xFexCrSi with antiferromagnetic and spin-glass states	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 094428(1)-(12)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.094428	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 M. Hagihala, S. Hayashida, M. Avdeev, H. Manaka, H. Kikuchi, and T. Masuda	4. 巻 4
2. 論文標題 Magnetic states of coupled spin tubes with frustrated geometry in CsCrF4	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 npj Quantum Materials	6. 最初と最後の頁 14(1)-(9)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41535-019-0152-5	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 該当する

1. 著者名 H. Manaka, H. Morita, T. Akasaka, Y. Miura, M. Hagihala, S. Hayashida, M. Soda, and T. Masuda	4. 巻 88
2. 論文標題 Substitution Effects on Magnetic Ground States with Geometrical Spin Frustration in Triangular Spin Tubes Formed in CsCrF4 and -KCrF4	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 114703(1)-(13)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.114703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Manaka, K. Tateishi, and Y. Miura	4. 巻 88
2. 論文標題 Real-space Imaging by Magnetic Birefringence for KNiF3 Under Inhomogeneous Stress	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124702(1)-(9)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.124702	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hirotaka Manaka, Hirofumi Nozaki, and Yoko Miura	4. 巻 969
2. 論文標題 Development of birefringence imaging techniques under high electric fields	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012119(1)-(6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/969/1/012119	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 Kazuki Matsui, Takayuki Goto, Hirotaka Manaka, and Yoko Miura	4. 巻 969
2. 論文標題 133Cs-NMR Study on the Ground State of the Equilateral Triangular Spin Tube CsCrF4	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012108(1)-(5)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/969/1/012108	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 M. Hiroi, S. Ishikuma, I. Shigeta, K. Koyama, A. Kondo, K. Kindo, H. Manaka, and N. Terada	4. 巻 969
2. 論文標題 Magnetization and magnetic phase diagram of Heusler compounds Fe _{3-y} (Mn _{1-x} V _x)ySi (y =1 and 1.5)	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012099(1)-(6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/969/1/012099	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 M. Hiroi, T. Nonoyama, G. Adachi, I. Shigeta, H. Manaka, and N. Terada	4. 巻 969
2. 論文標題 Magnetic properties of Heusler compound Fe _{1.3} Mn _{1.7} Si	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012098(1)-(6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/969/1/012098	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 Yoko Miura, Kazuya Okumura, Takumi Fukuda, and Hirota Manaka	4. 巻 696
2. 論文標題 Observation of Ferroelastic Domains in Layered Magnetic Compounds Using Birefringence Imaging System	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012153(1)-(6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/969/1/012153	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 T. Nonoyama, R. Kato, I. Shigeta, M. Hiroi, H. Manaka, and Norio Terada	4. 巻 8
2. 論文標題 Magnetic transition in the Heusler compounds Fe ₃ -xMnxSi	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP ADVANCES	6. 最初と最後の頁 115018(1)-(6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5080429	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18件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 H. Kikuchi, M. Hagihara, H. Manaka, S. Asai, S. Itoh, and T. Masuda
2. 発表標題 Inelastic Neutron Scattering in Kagome-Triangular Lattice CsCrF ₄
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, SCES 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 真中 浩貴, 森田 英揮, 赤坂 卓英, 三浦 陽子, 萩原 雅人, 林田 翔平, 左右田 稔, 益田 隆嗣
2. 発表標題 正三角スピントラップCsCrF ₄ の磁性不純物誘起磁気相転移の再検証
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三浦 陽子, 興相 彰太, 筒井 和彦, 真中 浩貴
2. 発表標題 複屈折イメージング法と電子スピン共鳴法による強磁性層状化合物(CH ₃ NH ₃) ₂ CuCl ₄ の構造相転移の検証
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 真中 浩貴, 興相 彰太, 三浦 陽子
2. 発表標題 複屈折イメージング法による量子常誘電体SrTiO ₃ の誘電分布状態の評価
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 益田 隆嗣, 萩原 雅人, 真中 浩貴, 林田 翔平
2. 発表標題 カゴメ三角格子磁性体CsCrF ₄ の中性子磁気回折と比熱測定
3. 学会等名 第55回熱測定討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉田 拓也, 真中 浩貴, 三浦 陽子
2. 発表標題 複屈折イメージング法を用いた量子常誘電体SrTiO ₃ の強誘電分布状態の評価
3. 学会等名 2019年度応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飯伏 隆盛, 真中 浩貴, 三浦 陽子
2. 発表標題 複屈折イメージング法による磁性強誘電体(C ₂ H ₅ NH ₃) ₂ CuCl ₄ の強誘電状態の評価
3. 学会等名 2019年度応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野々山 智仁, 加藤 遼太, 重田 出, 廣井 政彦, 小山 佳一, 真中 浩貴, 寺田 教男, 尾上 昌平
2. 発表標題 Fe _{3-x} MnxSiの低温での磁性
3. 学会等名 第125回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 真中 浩貴, 飯伏 隆盛, 三浦 陽子
2. 発表標題 複屈折イメージング法を用いた磁性強誘電体(C ₂ H ₅ NH ₃) ₂ CuCl ₄ の強誘電転移の観測
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Nonoyama, R. Kato, I. Shigeta, M. Hiroi, H. Manaka, and Norio Terada
2. 発表標題 Magnetic transition in the Heusler compounds Fe ₃ -xMnxSi
3. 学会等名 International Conference on Magnetism (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 三浦 陽子, 徳永 慧史, 真中 浩貴
2. 発表標題 カイラル結晶を用いた複屈折評価法の検討
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 菊地 帆高, 真中 浩貴, 浅井 晋一郎, 萩原 雅人, 伊藤 晋一, 益田 隆嗣
2. 発表標題 カゴメ三角格子CsCrF ₄ の中性子非弾性散乱実験
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 真中 浩貴, 米丸 裕作, 三浦 陽子
2. 発表標題 磁性強誘電体(C ₂ H ₅ NH ₃) ₂ CuCl ₄ の構造相転移と光学異常の解明
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 真中 浩貴, 上津原 高輝, 三浦 陽子
2. 発表標題 複屈折イメージング装置を用いたSrTiO ₃ の強誘電転移の観測
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 菊地 帆高, 真中 浩貴, 浅井 晋一郎, 萩原 雅人, 伊藤 晋一, 益田 隆嗣
2. 発表標題 カゴメ三角格子CsCrF ₄ における中性子非弾性散乱実験
3. 学会等名 User Group Meeting on MLF Spectrometers DIRECTION 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 菊地 帆高, 真中 浩貴, 浅井 晋一郎, 萩原 雅人, 伊藤 晋一, 益田 隆嗣
2. 発表標題 カゴメ三角格子CsCrF ₄ における中性子非弾性散乱実験
3. 学会等名 日本中性子科学会第18回年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 恩田 圭二郎, 佐藤 裕汰, 廣井 政彦, 真中 浩貴, 寺田 教男, 近藤 晃弘, 金道 弘一, 伊藤 昌和
2. 発表標題 MnNiGe-CoNiGe系の輸送特性
3. 学会等名 第124回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 真中 浩貴, 興相 彰太, 三浦 陽子
2. 発表標題 量子常誘電体SrTiO ₃ の応力誘起強誘電分域の観察
3. 学会等名 第74回日本物理学会年次大会
4. 発表年 2019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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------