

Title	Initial Formation Process of Ferroelastic Domain Structure Investigated by Optical and Spectroscopic Methods
Author(s)	藤井, 康裕
Citation	大阪大学, 2006, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/46461">https://hdl.handle.net/11094/46461</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	藤井康裕
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第 20011 号
学位授与年月日	平成 18 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科物理学専攻
学位論文名	Initial Formation Process of Ferroelastic Domain Structure Investigated by Optical and Spectroscopic Methods (光学的及び分光学的手法による強弾性ドメイン初期形成過程の研究)
論文審査委員	(主査) 教授 木下 修一 (副査) 教授 大貫 惇睦 教授 野末 泰夫 助教授 時田恵一郎 助教授 渡辺 純二

### 論文内容の要旨

強弾性とは、外部応力をかけない状態でも結晶内に自発歪が発生し、かつ歪に共役な応力を印加することによりその歪の方向が変化する、という性質である。強弾性体においては、等価な複数の歪の状態が存在し、それは同じ結晶の中で同時に存在しうる。複数の歪が混在する状態をドメイン構造と呼び、異なる歪をもつ領域が接する境界面は、ドメイン壁と呼ばれている。ドメイン壁は系の弾性エネルギーを増大させるので、自由エネルギーの観点からは、結晶全体に渡って一様なモノドメイン状態が最も安定であると考えられる。しかしながらほとんどの結晶においては、非一様なポリドメイン状態となることが知られている。ドメインが本質的に何故構築されるのか、という基礎的な疑問には、未だ明らかな答えは得られていない。

ドメインの発生に関しては、結晶に内在する欠陥や不純物を仮定した理論的研究がしばしばなされているが、現状では理論的な研究を裏付ける為の実験的な研究はほとんどなされていない。それは、従来のドメイン観察法では相転移温度 ( $T_c$ ) 近傍におけるごく僅かな歪みを精度よく検出することが難しく、できかけのドメインを観察することが出来ないからであると思われる。そこで我々は、 $T_c$  近傍のごく僅かな歪みを検出する方法として「光偏向法」を採用した。光偏向とは、隣り合うドメイン間で光学的主軸の方向に差があることに起因して起こる光の屈折/反射を意味し、偏向される角度  $\chi$  は結晶の屈折率で決まる。ドメインが存在しない場合は  $\chi$  の方向に光が存在しないので、ドメイン形成をバックグラウンドフリーで検出することが可能である。

本研究では、強弾性体 DKTS ( $\text{KD}_3(\text{SeO}_3)_2$ ) を試料に、偏向光観測を精密に、また超高感度で行なうことで、ドメインができあがる様子を詳細に観測した。この結果、 $T_c + 10^\circ\text{C}$  程度の高い温度でも、偏向光が生じることを見いだした。加えて本研究では、ドメインという静的な構造を調べると同時に、弾性不安定化の観測も行なった。一つの光学定盤に、光偏向用光学系と Brillouin 散乱分光用の光学系を組み上げ、結晶の同じ部位を、測定環境を一切変えることなく 2 つの手法で同時に観測した。その結果興味深いことに、Brillouin 散乱分光で決定した相転移温度  $T_c^{(B)}$  と、光偏向法で決定した温度  $T_c^{(O)}$  に約 40 mK の温度差が再現性よく生じることを見いだした。

実験結果の現象論的考察から、i) 高温相には結晶に内在する応力をきっかけとしてできあがる、ドメインの「種」が存在し、ii) 結晶温度が  $T_c$  に近づくと「種」が結晶の相関長で特徴づけられるサイズをもつ「萌芽的ドメイン」

に成長して、iii) さらにそれが低温相におけるいわゆるドメイン構造へと連続的に成長していく、という強弾性ドメイン形成過程が明らかになった。

### 論文審査の結果の要旨

本研究は、強誘電体・強磁性体と同様、相転移することにより結晶中に自発的に歪みをつくる強弾性体において、結晶内部に等価な複数の自発歪の状態を空間的に分布すること（ドメイン構造）に関して、実験および理論両面から詳細に研究することにより、ドメインの形成過程に対して新しい解釈を与えるものである。

この中で、ドメイン形成の初期過程を検出する手段としては、もっとも感度のよい光偏向法という手段を用いて、ドメイン形成の前段階の状態を実験的に詳細に求めることに成功した。さらに、強弾性相転移に伴う揺らぎの存在と静的なドメイン構造の共存を説明するため、光偏向法とブリルアン散乱分光法という2つの測定方法を同時計測する実験系を造り上げた。実際に測定をしたところ、光偏向法で決めたドメイン構造を反映する相転移温度と、動的な揺らぎを反映するソフトモードの振動数から決めた相転移温度との間には 40 mK のずれを生じることが明らかになった。この原因を探るため理論的な考察を行い、ドメイン形成の初期には、ドメインのできていないとされている高温領域ですでにドメインの種とよぶべき応力分布が生じており、これが相転移点に向かって歪みを増大させ、ドメインの萌芽状態をつくりあげる。このような応力の存在下で相転移させると、複数ある歪みの状態の1つだけが選択されるので、萌芽状態により規定されたドメイン構造が低温で実現するという、画期的な機構である。さらに、隣り合うドメイン間の壁の厚さが相転移近傍で温度と共に変化することが、2つの方法で決定した相転移温度にわずかなずれを生じさせることをモデル計算により明らかにした。

ドメイン形成機構の解明は、物質内に制御された歪みを造り上げる、フォトニクス技術とも密接に関連しており、今後も大いに期待できる分野である。本研究の結果を用いれば、わずかな応力を物質に与え相転移を経験させるだけで、制御されたドメイン構造をつくりあげることができ、新たな技術開発にもつながると考えられる。またこの研究は、自然界におけるさまざまなパターン形成の問題とも深く結びついており、今後の秩序形成・パターン形成の新しい研究方法、解析方法を与えるものとして、大きな貢献が期待できる。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値のあるものと認める。