

サブミクロン領域における磁性と誘電性の 同時評価システムの開発

鈴鹿工業高等専門学校 教養教育科 三浦陽子

Observation of Magnetic and Dielectric Domains in Submicron Region Using Birefringence Imaging System

Yoko MIURA

National Institute of Technology (KOSEN), Suzuka College

磁性と誘電性が共存するマルチフェロイクス物質では、応力を印可すると、 piezo電気効果と線形磁気電気効果によって piezo磁気効果の出現が期待されている。しかし piezo磁気効果は非常に小さく、また試料内での応力が拡散し、分布することが、精密な実験研究を困難にさせている。本研究では、応力を印可しながら複屈折イメージング測定が可能な応力印可装置の開発を行った。開発した装置を用いて石英ガラスの複屈折イメージング測定を行った結果、15 Kまで温度を下げても印可した応力が保持できることを確認した。さらに典型的な反強磁性体 KNiF_3 を用いて、応力によって誘起される磁気複屈折を観察した結果、短軸方位の空間分布に3種類のドメインが現れ、それらを隔てるドメイン壁の観察にも成功した。

In multiferroic antiferromagnets under mechanical stress, piezomagnetism is expected to be caused by the piezoelectric effect combined linearly with the magnetoelectric effect. Because piezomagnetism is a weak phenomenon, it is hard to study it experimentally, especially given the unavoidable distribution of mechanical stress within a sample. In this study, a stress application apparatus is developed to use birefringence imaging techniques. Using optical glass, applied stress is retained at temperatures down to 15 K. As a result of performing the stress-induced magnetic birefringence in typical antiferromagnet KNiF_3 , three types of fast-axis rotation areas and their domain boundaries are clearly observed.

1. はじめに

強磁性や強誘電性、強弾性などの強的な性質を複数有する物質群をマルチフェロイック物質と呼ぶ。特に磁場によって電気分極を制御したり、電場によって磁化の向きを制御したりする技術は基礎物性分野だけでなく、デバイス開発の分野でも盛んに研究が行われている¹⁾。さらに強弾性体では、応力を用いて強誘電分域だけでなく磁区構造も制御できるならば、3つ目の外力パラメータとして興味深い。本研究では、応力によって磁区や誘電分域が変化する様子を可視化できる複屈折イメージング装置の開発を行った。

2. 実験方法

2.1 複屈折イメージング測定法

複屈折とは図1に示すように、 z 方向に進む光に対して垂直面内の屈折率 (n_x, n_y) に異方

性があるとき、光が媒質中を進む速度に差が生じるために起こる現象である。実験では入射光と出射光の偏光状態の変化を調べることによって、複屈折現象による2方向の振動電場の位相差(δ)と、屈折率が最小を示す方向(短軸方位, ψ)が分かる。これらの変数は分子の配向や原子の配列だけでなく、電子スピンの配列を反映する事が知られているため、1970年代以降、レーザ光を用いた磁性や誘電性に関する実験研究が数多く報告されてきた²⁾。しかしレーザ光を用いた実験では、試料の1箇所の情報しか得られないため、空間的に広がった磁区や誘電分域に関する情報が得られないのが弱点であった。そこで本研究では、複屈折量(δ, ψ)の分布を面情報として得られる複屈折イメージング測定法に注目した³⁾。

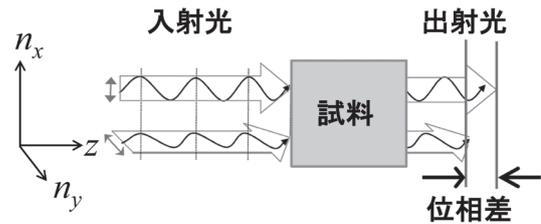


図1 複屈折現象の原理

2.2 応力印可装置の開発

応力に比例して位相差(δ)が増大する光弾性効果を利用した、偏光顕微鏡を用いた応力下での磁区や誘電分域の観察は、古くから行われてきた。しかしこの方法では、光の明暗から各ドメインは識別できるが、複屈折量(δ, ψ)の定量評価ができなかった。また試料に応力を一様に印加しても、応力が拡散し、分布することが避けられない。そのため応力を用いた実験では応力分布の定量評価が必要であったため、磁場や電場を用いた実験と較べて研究報告が極端に少ない。このような困難を乗り越えるため、本研究では複屈折イメージング測定法によって得られる複屈折量(δ, ψ)の面情報から、応力分布と同時に磁区や誘電分域を観察することを試みた。この目的を遂行するため、まず応力を印可しながら低温で複屈折イメージング測定ができる応力印可装置の開発を行った。

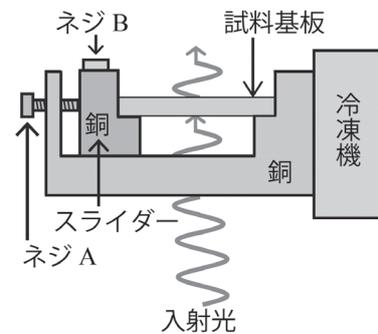


図2 応力印可装置の概略図

図2には、新たに開発した応力印可装置の概略図を示す。10~300 Kでの測定を想定しているため、熱伝導率の良い銅で応力セルを作製した。ネジAでスライダーを押し込むことで応力を印可し、ネジBでスライダーが動かないようにロックする方法を採用した。この方式を採用することによって、ネジAに加えるトルクによって試料に印可される応力が制御可能となる。

3. 実験結果と考察

3.1 応力印可装置の特性評価

一般にガラスに応力を印可すると短軸方位(ψ)は印可方向に揃い、さらに位相差(δ)は応力に比例して大きくなる事が知られている。図3には、室温でネジAのトルクを制御しながら石英ガラスに応力を印可したときの複屈折イメージング画像を示す。この結果よ

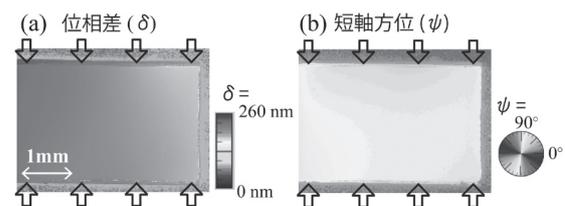


図3 室温で石英ガラスに0.30 Nmのトルクを掛けたときの(a)位相差(δ)と、(b)短軸方位(ψ)の空間分布。矢印は応力の印可方向を示す。

り、短軸方位 (ψ) が一様に揃っているため、応力が一様に印可されていることが分かった。一方、位相差 (δ) は応力の印可方向に対して平行方向では一様であるが、垂直方向では分布している。これは縦方向に印可した応力が横方向に拡散していることを示す。図4にはネジAに加えたトルクと位相差 (δ) との関係を示す。応力に対して直線的に位相差 (δ) が増大しており、この直線の傾きと石英ガラスの光弾性定数を用いて、応力 (σ) を見積もることができた。

図5には、石英ガラスに $\sigma=38$ MPa の応力を印可したまま、300 K から 15 K までの間で温度を上げ下げした時の複屈折量 (δ, ψ) の温度変化を示す。短軸方位 (ψ) は温度に対して、あまり変化しなかった。一方、位相差 (δ) は低温で増大したが、温度を上げ下げしてもヒステレシスはほとんどなかった。この結果から、低温にしても応力が保持できていることが分かった。

3.2 反強磁性体 KNiF_3 の応力下複屈折イメージング測定

反強磁性体 KNiF_3 では、結晶構造は立方晶を保ったまま、 $T_N=243$ K で反強磁性磁気相転移を起こすことが知られている^{4,5)}。そのため反強磁性秩序相では、[100] もしくは [010], [001] にスピンの互い違いに揃っている3種類の磁区の出現が期待できる。これらの磁区を単一化するため、[100] 方向に応力を印可しながら複屈折イメージング測定を行った。図6には反強磁性秩序相での複屈折イメージング画像を示す。この結果より、位相差 (δ) の分布から石英ガラスと同じように応力方向に対して垂直方向に応力が拡散している様子が得られた。一方、短軸方位 (ψ) の分布を見ると明らかに異なる3つのドメインが現れた。図7には図6に示した矢印の方向に沿って位相差 (δ) と短軸方位 (ψ) を解析

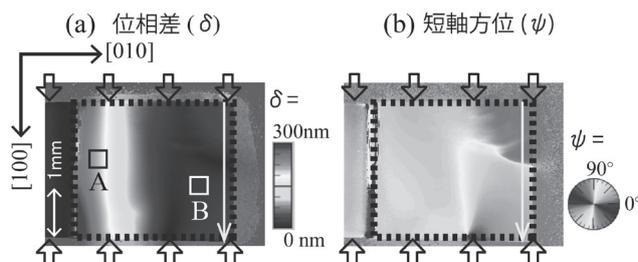


図6 KNiF_3 に 24 MPa の応力を印可して、30 K まで温度を下げたときの (a) 位相差 (δ) と、(b) 短軸方位 (ψ) の空間分布。矢印は応力の印可方向を示す。

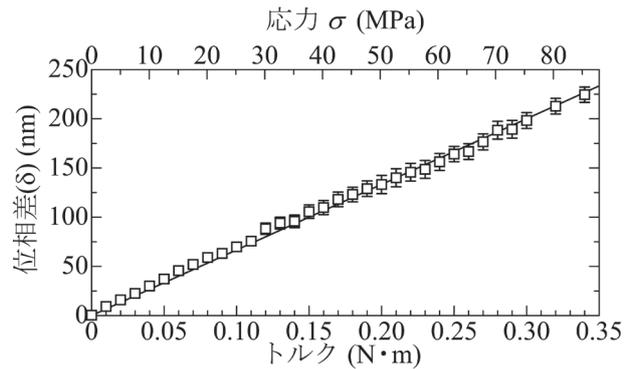


図4 トルクと位相差 (δ) との関係図。石英ガラスの光弾性定数と得られた位相差との関係から、実際に掛かっている応力が換算できる。

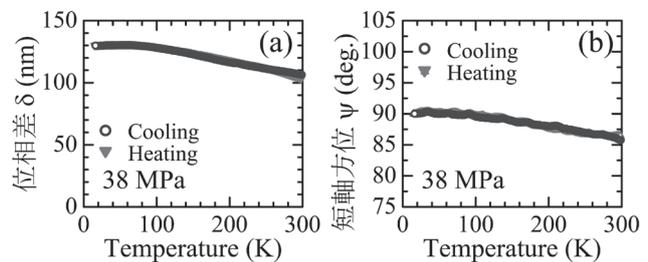


図5 石英ガラスに $\sigma=38$ MPa の応力を印可したときの (a) 位相差 (δ) と、(b) 短軸方位 (ψ) の温度依存性。

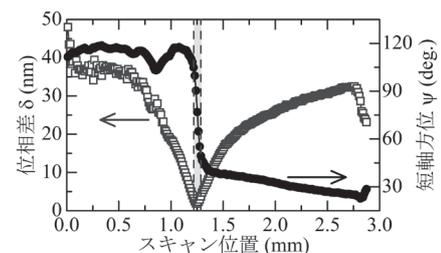


図7 KNiF_3 に 24 MPa の応力を印可して、30 K まで温度を下げたときの位相差 (δ) と短軸方位 (ψ) のライン解析の結果。

した結果を示す。スキャン位置が 1.25 mm 付近で 0.1 mm (=100 μ m) 以下のドメイン壁が存在し、これを境にして位相差 (δ) も短軸方位 (ψ) も大きく異なることが分かった。図 8 には図 6 で示した 2 箇所のエリアについて、位相差 (δ) の温度変化を示した。この結果より、反強磁性転移温度で位相差 (δ) に異常が現れたが、24 MPa まで応力を印可しても相転移温度に変化はなかった。この異常の原因は、スピンの依存した複屈折が反強磁性転移温度以下で現れたためと考えられる。

図 1 に示した座標系を用いて、 z 軸方向に光を入射し、スピンの向きが y 方向を向いている場合のスピンの依存した屈折率 (n_x^m, n_y^m) を、スピンの依存した誘電率テンソル (ε_{ij}^m) を用いて記述すると、

$$n_x^m = \sqrt{\varepsilon_{xx}^m},$$

$$n_y^m = \sqrt{\varepsilon_{zz}^m + \frac{(\varepsilon_{yz}^m)^2}{\varepsilon_{zz}^m}},$$

となる⁶⁾。ただし KNiF_3 では、 $T_N=243 \text{ K}$ 以下でコリニアな反強磁性磁気構造をとるため、 $\varepsilon_{yz}^m=0$ となる。したがってスピンの依存した複屈折 (磁気複屈折, Δn_m) は、

$$|\Delta n_m| = |n_x^m - n_y^m| \approx \frac{|\varepsilon_{xx}^{m(2)} - \varepsilon_{zz}^{m(2)}|}{2\sqrt{\varepsilon_{zz}^{m(0)}}} M^2,$$

となる。ただし $\varepsilon_{ij}^{m(0)}, \varepsilon_{ij}^{m(2)}$ は $\varepsilon_{ij}^m=M$ における 0 次と 2 次の微分係数である。この結果より磁気複屈折は M^2 に比例するため、反強磁性体でも観測が可能となる。同様に x 方向にスピンの向きが向いている場合にも磁気複屈折が出現するが、一方、 z 方向にスピンの向きが向いている場合には出現しない。この結果より、図 6 で観測できたドメインは反強磁性的に揃ったスピンの面内に寝ているような磁区を反映していると考えられる。

4. 結論

今回、低温で複屈折イメージング測定が可能な応力印可装置の開発に成功した。石英ガラスによる実験では、光弾性効果によって位相差 (δ) が応力に対して直線的に増大し、短軸方位 (ψ) が応力方向に揃う結果が得られた。さらに 15 K まで温度を下げて応力が保持できたので、開発した応力印可装置は期待通りの性能を発揮することが分かった。

次に反強磁性体 KNiF_3 を用いて実験を行った結果、一様に応力を印可したにもかかわらず、3 種類のドメインの出現を観測した。磁気複屈折を計算した結果、面内に寝ているスピンの観測している事が分かった。今後は短軸方位 (ψ) の空間分布を定量的に解析することによって、このドメインの性質を明らかにしていきたい。

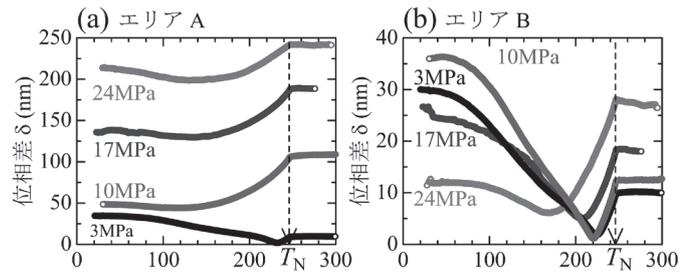


図 8 KNiF_3 に応力を印可したときの位相差 (δ) の温度依存性。解析を行ったエリア A とエリア B の位置は図 6 に示している。

以上の結果より, 本装置を用いれば応力分布を評価しながら, 同時に磁区や誘電分域の評価が可能であることが分かり, 応力実験の今後の発展が期待できる。

5. 謝辞

本研究は平成 30 年度日本板硝子材料工学助成会の研究助成を受けて行ったものである。同助成会に心より感謝いたします。

6. 参考文献

- 1) T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima, and Y. Tokura, *Nature* **426**, 55 (2003).
- 2) T. Moriya, *J. Phys. Soc. Jpn.* **23**, 490 (1967).
- 3) H. Manaka, G. Yagi, and Y. Miura, *Rev. Sci. Instrum.* **87**, 073704 (2016).
- 4) J. Nouet, A. Zarembowitch, R. V. Pisarev, J. Ferré, and M. Lecomte, *Appl. Phys. Lett.* **21**, 161 (1972).
- 5) J. Ferré and G. A. Gehring, *Rep. Prog. Phys.* **47**, 513 (1984).
- 6) R. M. Azzam and N. M. Bashara, *Ellipsometry and Polarized Light* (North-Holland, Amsterdam, 1977).