

審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 林田 健志

対称性の破れは物理学に共通なキーワードであり、様々な分野において、対称性の破れに起因した現象や性質に関する研究が行われている。物性物理においては、特に、自発的な対称性の破れに起因した「フェロイック秩序」が長年にわたり興味の対象となってきた。本論文では、物質中の対称性の破れによって引き起こされた様々な秩序状態を、その状態に固有な光学現象を用いることで観測する手法を開発し、実証した。本論文は6章からなり、その内容を要約すると以下のとおりである。

第1章では、序論としてフェロイック秩序の定義および対称性の破れの観点からのフェロイック秩序の分類について説明したうえで、研究の目的および本論文の構成を述べている。

第2章では、相転移に際して鏡映対称性が破れることによって発現する「フェロキラル秩序」を対象として、フェロキラル物質の提案・実証、キラルドメイン観測とレーザー照射によるキラリティ反転に関する研究についてまとめている。対象とした物質 $\text{Ba}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$ では、室温でキラルな結晶構造を有するが転移温度 710°C でアキラルな相へと構造転移（フェロキラル転移）を示す。旋光測定および構造変化の考察により、同キラル相への転移において、正負一對の極性ユニットの反強的回転歪みによりキラリティが現れるという、結晶キラリティ発現の新たな仕組みを提案した。このキラル相への転移に伴い、異なるキラリティを有する状態がマルチドメイン構造を形成するが、同転移は強誘電性秩序や強弾性秩序を伴わないため、電場や応力の印加を介したドメインの制御が行えず、キラリティの外場制御は容易ではない。本研究では、これを克服すべくレーザー照射による結晶キラリティの反転を試み、その実証に成功し、さらに局所加熱によるドメイン壁の安定性の観点からレーザー照射によるキラリティ反転の機構を説明した。

第3章および第4章では、結晶構造における原子配置の回転歪みによって特徴付けられる「フェロアキシシャル秩序」を対象として、そのドメイン観測手法の開発、さらにはフェロアキシシャル物質に特有な光学現象の観測について記載している。フェロアキシシャル秩序は時間反転対称性の保たれた軸性ベクトルの対称性を有し、非フェロアキシシャル相からフェロアキシシャル相への相転移を有する物質においては、回転の方向が時計回りと反時計回り、すなわち軸性ベクトルの符号が反対の2つの構造がドメインを形成する。しかしながら、ドメインの観測の報告はそれまでなかった。本論文では、電場誘起の旋光性（電気旋光効果）という光学現象に着目し、電場変調イメージング法により電気旋光効果の空間分布を測定することでフェロアキシシャルドメインの可視化を試みた。その結果、フェロアキシシャル物質 NiTiO_3 および $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ において、フェロアキシシャルドメインを初めて可視化することに成功した。さらにフェロアキシシャル物質

に特有な光学現象として、電場の印加によって誘起されるキラリティに起因する電場誘起磁気キラル効果を NiTiO_3 において初めて観測することにも成功した。

第5章では、「フェロイックな磁気単極子秩序」とみなすことのできる反強磁性秩序を示す Cr_2O_3 を対象として、その対称性の破れに起因した特異な光学効果を用いた反強磁性ドメイン観測の実証について記載している。 Cr_2O_3 は線形電気磁気効果を示す代表的なマルチフェロイック物質として知られ、その反強磁性ドメイン観測については第二高調波発生を用いた手法などにより実現されている。本論文では、既存の手法よりも簡便な新たな観測手法として、非相反光学効果を用いた反強磁性ドメイン観測法を提案し、上述の電場変調イメージング技術をさらに拡張した顕微測定系を構築した。これを用いて電場印加によって誘起される磁化に起因する電場誘起ファラデー効果、電場誘起円二色性の空間分布を観測することにより、 Cr_2O_3 の反強磁性ドメインを明瞭に可視化することに成功した。さらに、電場変調に代えて入射光の偏光変調イメージング技術を利用した測定系を開発し、反射光の非相反偏光回転を利用した反強磁性ドメインの観測にも成功した。

第6章では、本研究を総括し、今後期待される研究展開に関して述べている。

以上のように本研究では、種々のフェロイック秩序において、対称性の破れに起因した光学現象を用いることで秩序状態の観測に成功した。これらの結果はフェロイック秩序に関する研究のさらなる進展に貢献するものと考えられる。

なお、第2章は漆原大典，浅香透，木村健太，木村剛各氏との，第3章は上村洋平，松岡悟志，長谷川達生，萩原雅人，廣瀬左京，森岡仁，木村健太，木村剛各氏との，第4章は木村健太，木村剛各氏との，第5章は荒川慶人，大島貴彦，木村健太，木村剛各氏との共同研究であるが、いずれも論文提出者が主体となって、研究計画，測定，解析，考察を行っており，論文提出者の寄与が十分であると判断する。

よって本論文は博士（科学）の学位請求論文として合格と認められる。

以上2085字