

令和 3 年 6 月 3 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K05030

研究課題名(和文)非弾性光散乱法によるリラクサー強誘電体の巨大外場応答の解明

研究課題名(英文)Colossal external field response of relaxor ferroelectrics studied by inelastic light scattering

研究代表者

小島 誠治(Kojima, Seiji)

筑波大学・数理工学系・名誉教授

研究者番号：90134204

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：相転移の散漫性と誘電分散が顕著なリラクサー強誘電体は、巨大圧電効果など工学的にも重要である。そのナノサイズ極性領域について三次元的分極揺らぎのあるペロフスカイト構造酸化物、一次的分極揺らぎのあるタングステンブロンズ構造酸化物の強誘電相転移のダイナミクスをブリルアン散乱、ラマン散乱、テラヘルツ時間領域分光法などによりキガヘルツからテラヘルツ帯に至る広帯域の周波数にわたるリラクサー強誘電体のダイナミクスについての実験を行った。その温度依存性野外場依存性の実験データを解析して、三次元並びに一次元リラクサー強誘電体のナノサイズ極性領域のメカニズムについての普遍性のある物理的解釈を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

強誘電体はスマホ、テレビ、カメラ、自動車など様々な形で人の生活に関わりを持つが、機器の内側に部品として組み込まれているために目にすることはない。この様な多岐にわたる応用があるのは、強誘電体の多岐にわたる優れた物理的性質に起因する。電場により変形が起こる圧電効果は、スマホの狭帯域フィルター(表面弾性波フィルタ)や環境にやさしい床発電に使われている。この圧電効果が従来の強誘電体に比べて非常に大きいのがリラクサー強誘電体である。本研究では未だ解明されていないリラクサー強誘電体の巨大電場応答のメカニズムを最先端の分光法によりその物理的基礎を解明し新しいリラクサー強誘電体開発の指針を与えた。

研究成果の概要(英文)：Relaxor ferroelectrics with remarkable frequency dispersion and diffusivity are very important materials by giant-piezoelectric and large dielectric constants. The dynamical properties of typical relaxor ferroelectrics of three dimensional perovskite structure such as PMN-PT, PZN-PT, PSN, KNN, NBT, KTN and uniaxial tungsten bronze structure such as SBN, CBN, SCBN have been investigated by Brillouin scattering, Raman scattering, and terahertz-time-domain spectroscopy. These experimental results of the broadband frequency on temperature and external field dependences of dynamical susceptibility have been analyzed and the universal physical properties in relaxor ferroelectrics with three dimensional and one dimensional polarization fluctuations have been discussed in relation with giant-piezoelectric effect and large dielectric response.

研究分野：応用物性

キーワード：リラクサー強誘電体 キュリー温度 ペロフスカイト構造 タングステンブロンズ構造 ブリルアン散乱 ラマン散乱 テラヘルツ時間領域分光 ソフトモード

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

強誘電体は、高い誘電率、圧電効果、焦電効果、電気光学効果、非線形光学効果等により、我が国の基盤産業を支える重要な機能性材料である（小島誠治他編集：学術誌「固体物理」特集号「誘電体物理の新しい展開」2000年9月）。強誘電体はスマホ、テレビ、カメラ、自動車など様々な形で人の生活に関わりを持つが、機器の内側に部品として組み込まれているために目には見えない。この様な多岐にわたる応用があるのは、強誘電体の多岐にわたる優れた物理的性質に起因する。電場により変形が起こる圧電効果は、スマホの狭帯域フィルター（表面弾性波フィルタ）や環境にやさしい床発電に使われている。この圧電効果が従来の強誘電体に比べて非常に大きいのがリラクサー強誘電体である。

本研究で対象としたリラクサー強誘電体は、キュリー温度近傍の顕著な緩和的誘電分散とキュリー・ワイス則に従わない散漫的な誘電異常を示す一連の強誘電体の名称であり、その多くは構造の乱れに起因するランダム場をもつペロフスカイト構造の酸化物である。従来の圧電材料PZTとは異なり、大型単結晶の成長が可能であるために巨大圧電効果や巨大誘電率などの顕著な電場応答を示す。電荷不均一性によるランダム場やナノサイズの秩序領域の存在により固体物理学として重要なトピックスであるとともに、高感度の超音波振動子など産業界でも大きく注目されている優れた機能性物質である。しかしそれらの巨大応答の機構は未解決である。

リラクサー強誘電体は、ソナーやアクチュエータ等への応用が軍事技術として有用であるために、米国、ロシア、中国などが基礎研究も含む大規模な研究費を提供して実用化に至る様々な研究をしている。日本では大手企業が医療用の高感度超音波振動子として熱心に開発していたこともあったが、今は下火である。このため我が国のこの分野の研究は遅れており、早急の支援が必要である。リラクサー強誘電体は、チタン酸バリウムなどの従来の強誘電体とは異なり結晶構造の乱れがあるのが特徴で、電荷やイオン半径の不均一性に起因するランダム場が重要な役割を担っている。このランダム場により新たにメソスケールの秩序が現れ、それが化学秩序領域(Cheical ordered region, COR)と極性ナノ領域(Polar nanoregion, PNR)である。これらの動的、並びに静的なナノスケールの不均一性の役割について、これまで十分に調べられていなかったギガヘルツ帯からテラヘルツ帯の広帯域ダイナミクスをブリルアン散乱（小島誠治：超音波テクノ、15, 55 (2003)）、「顕微ブリルアン散乱によるリラクサー強誘電体の研究」）、ラマン散乱（小島誠治：分光研究 44, 157(1995)）、「ラマン散乱 - 応用」）、赤外活性な強誘電体のソフトモードを調べるテラヘルツ時間領域分光法（小島誠治他：固体物理, 38, 307 (2003)）、「テラヘルツ時間領域分光と物性物理への応用」）により解明することが重要な課題となっていた。

2. 研究の目的

巨大外場応答を示すリラクサー性の起源としては、静的なナノサイズの化学秩序領域 (chemically ordered region, COR) と静的並びに動的な極性ナノ領域 (polar nanoregion, PNR) による不均一構造が重要な役割を担うと考えられている。特に後者の PNR は温度依存性が顕著であるとともに、電場や圧力などの外場に対しても敏感に応答する。従来の研究では、様々な測定手段により温度依存性と電場依存性は詳しく調べられているが、単結晶を用いた圧力依存性の実験は精度の高い測定系の構築が容易でないために研究が進んでいなかった。本研究ではこれまで蓄積してきた温度を変えながら測れる電場依存性、散乱スペクトルの角度依存性についてのブリルアン散乱、ラマン散乱、テラヘルツ時間領域分光法など

の測定技術を生かしてさらに研究を進めることを目的とした。対象とするリラクサー強誘電体としては、組成変化によって強いランダム場から弱いランダム場で制御できるペロフスカイト構造の3次元リラクサー強誘電体の $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ 、 $(1-x)\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ 、 $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ 、タングステンブロンズ構造の一軸性リラクサー強誘電体 $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 、 $\text{Ca}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ を研究する。PNRのサイズやその中の局所的分極の方向や局所的ひずみは、圧力に対して顕著な応答が期待できるので、ブリルアン散乱、ラマン散乱スペクトルにおける準弾性散乱ピークや、スペクトルの角度依存性により明らかにする。これらの実験結果をもとに、PNRの電場や圧力に対する応答の普遍性を導き、リラクサー強誘電体の巨大な外場応答を解明することを目的とした。

3. 研究の方法

前項でも述べたように、リラクサー強誘電体のダイナミクスを解明するためには動的感受率の広い周波数域での測定が必要である。このため、ギガヘルツ帯の動的感受率は光の非弾性散乱であるブリルアン散乱、テラヘルツ帯のラマン感受率はラマン散乱、複素誘電率はテラヘルツ時間領域分光法などにより広帯域の周波数にわたる動的感受率の信頼性の高い測定を行った。PNRの電場応答については、強誘電軸方向の電場印可状態でのブリルアン散乱の温度依存性や時効について測定した。また、PNRの局所対称性を調べるために、ラマン散乱の偏光角度依存性、温度依存性の実験を行った。立方晶系の常誘電相の強誘電相転移ソフトモードはラマン不活性かつ赤外活性となるため、テラヘルツ時間領域分光法によりソフトモードを調べた。

4. 研究成果

巨大外場応答を示すリラクサー強誘電体の起源としては、電荷不均一性に起因するランダム場により発生するナノサイズ極性領域 PNR による空間的なナノサイズの不均一構造が重要な役割を担うと考えられている。強誘電相転移温度であるキュリー温度よりも数百度高温の Burns 温度で PNR は現れ、温度降下により顕著に温度変化するとともに、電場や圧力などの外場に対しても敏感に応答する。研究の対象とするリラクサー強誘電体としては、ペロフスカイト構造酸化物で酸素八面体内部の B サイトの電荷不均一性によるランダム場の強さが異なる3次元リラクサー強誘電体である鉛系の $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ (PMN-100xP)、 $(1-x)\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ (PZN-100xP)、 $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ 単結晶、非鉛系の $(1-x)\text{KTaO}_3-x\text{KNbO}_3$ (KTN100x)、 $(\text{K}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{NbO}_3$ (KNN)単結晶について、強誘電軸方向の電場印可状態でのブリルアン散乱の温度依存性や時効について調べた。また、PNRの局所対称性を調べるための PMN-100xPT、KTN100x 単結晶のラマン散乱の偏光角度依存性、温度依存性の実験を行った。PMN-100xPT については、ランダム場の強い $x = 0.17$ 、並びにランダム場の弱い $x = 0.56$ の結晶についてブリルアン散乱、ラマン散乱により、3次元ランダム場と3次的強誘電相転移の散漫性との相関を考察した。さらに、結晶格子を直接圧縮できるダイヤモンドアンビルセルを用いた高圧下の構造相転移のラマン分光測定を、ペロフスカイト構造を持つ強誘電体である KNbO_3 、 NaNbO_3 について行った。

結晶成長時の熱処理で格子欠陥の量を制御できるとともに、結晶成長後の熱処理によりペロフスカイト構造の酸素八面体内部の B サイトのランダム性を制御できる $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ (PSN) 単結晶についても研究した。(1) 格子欠陥の多い PSN、(2) B サイトが秩序化して占有された格子欠陥の少ない PSN、(3) B サイトが無秩序に占有され

た格子欠陥の少ない PSN の 3 種類の異なるランダム場の結晶について、キュリー温度付近における弾性異常と臨界緩和を調べた。その結果、B サイトの占有の無秩序性と同程度のリラクサー性を格子欠陥の多い PSN も示すことが明らかになった。この研究成果は伝統ある強誘電体の国際会議で発表するとともに国際学術誌に論文を出版した。

また、3 次元リラクサー強誘電体との比較のために、一軸性のリラクサー強誘電体であるタングステンブロンズ構造の酸化物で A サイトに電荷不均一性によるランダム場のある $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ (SBN100x) , $\text{Ca}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ (CBN100x) , $(\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x)_{1-y}\text{Ba}_y\text{Nb}_2\text{O}_6$ (100ySCBN100x)単結晶についても、それらの PNR に関連したダイナミクスを調べるために同様の実験を行った。一軸性のリラクサーであるタングステンブロンズ構造で A サイトに電荷不均一性によるランダム場のある $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ (SBN100x)の最良組成である $x = 0.61$ の高品質単結晶を用いて、電場印可状態でのプリルアン散乱の温度依存性や時効について調べその機構について考察した。また、Sr の成分である x を広い範囲で変化させてランダム場の微弱な $x = 0.26$ とランダム場の極めて強い $x = 0.75, 0.80$ の結晶の強誘電相転移も調べ一軸性強誘電相転移の散漫性と 1 次元のランダム場の強さとの相関について考察した。

これらの実験により得られた結果をもとにして、3 次元的なペロフスカイト構造リラクサー強誘電体、並びに 1 次元的なタングステンブロンズ構造リラクサー強誘電体における静的並びに動的なナノサイズ極性領域の温度依存性、外場依存性を明らかにするとともに、3 次元的リラクサー強誘電体と 1 次元的リラクサー強誘電体の差異について普遍性のある物理的解釈を行った。

さらに、これまで研究が進んでいなかったテラヘルツ帯で反射率の高い強誘電体研究に適したテラヘルツ反射型エリプソメトリーによる強誘電ソフトモード、緩和モードなどのテラヘルツダイナミクスの研究を行った。ペロフスカイト構造で寛容係数がほぼ 1.0 である理想的なパッキング状態である量子常誘電体 SrTiO_3 (STO)結晶は、低温に向かって強誘電的不安定性が増大するが量子揺らぎのための強誘電性は発現しない。しかし、微量の元素添加によりこの理想的な安定構造が乱され、強誘電性、超伝導性、スタガード相転移などが出現することが知られている。リラクサー強誘電性の観点からは、微量の元素添加はランダム場の導入によりナノ極性領域(PNR)が生じて量子揺らぎに拮抗するとともに、多形と結びつく様々な構造不安定性が誘発される。A サイトの Sr を同じ価数の Ca や異なる価数の La で置換して結晶について測定を行い、STO の強誘電的不安定性に対応するソフトモードの振動数の変化について調べ、新しい知見を得た。さらに B サイトの Ti を Nb や Ta で微量元素置換することによりランダム場を導入した量子常誘電体 STO についても研究を進め、これらの研究結果の中から価値の高い研究成果は、国際学術誌に論文を出版するとともに当該分野の代表する国際会議で発表した。これらと併行して、強誘電体の格子不安定性についての新しい研究手法の確立を目指して、テラヘルツ分光法によるフォノン・ポラリトンの分散関係の研究も行った。また、STO 結晶の A サイトもしくは B サイトを微量の元素で置換して PNR を生じさせた結晶については、その音波物性をプリルアン散乱法により調べ置換効果を考察し、国際会議で発表をするとともに論文を出版した。

また、令和 2 年度は最終年度であるため、これまでの研究成果を取りまとめて総説論文も出版した。巨大電場応答の起源として PNR の存在が挙げられる。PNR の現れる温度はキュリー温度より数百度上の Burns 温度である。この Burns 温度は結晶構造と相関があり、ペロフスカイト構造やタングステンブロンズ構造では、その構造の強誘電体の中で最も

高いキュリー温度に近い。例えば、タングステンブロンズ構造の場合は最も高いキュリー温度を示す強誘電体は $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ (BNN)であるが、リラクサー強誘電体 $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$ (SBN)の Burns 温度はこの BNN のキュリー温度に近い。このため、酸素八面体型強誘電体を中心に様々な結晶構造の強誘電体について高いキュリー温度とその組成変化による制御についての総説論文を執筆した。強誘電性の最初の発見は 1920 年 4 月に米国物理学会で J. Valasek により報告されたロッシェル塩であり、2020 年は強誘電性発見 100 周年にあたる。米国の国際学術誌 *Ferroelectrics* から 100 周年特集号 Vol.569, No.1 (2020) が刊行された。(<https://www.tandfonline.com/toc/gfer20/569/1?nav=toCList>) 世界各国の主要な研究者から 20 編ほどの論文が寄稿されたが、日本が主体的に行った研究を紹介した総説論文は 1 件のみであった。これまでは、ペロフスカイト構造やタングステンブロンズ構造のリラクサー強誘電体が主に研究されてきたが、最近では様々な結晶構造の強誘電体について元素置換によりリラクサー的な挙動が現れることが報告されている。この高いキュリー温度の強誘電体の総説が、より高い Burns 温度をもつ新しい結晶構造のリラクサー強誘電体の研究に役立つことを願っている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計20件（うち査読付論文 20件 / うち国際共著 16件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 S. Kojima	4. 巻 569
2. 論文標題 uper-high Curie temperature ferroelectrics and superior TC tunability: lattice instability and ferroelectric phase transitions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Ferroelectrics	6. 最初と最後の頁 122-135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00150193.2020.1791657	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 S. Kojima, T. Iwamoto, and Y. Satou	4. 巻 59
2. 論文標題 Study of A-site substituted quantum paraelectric strontium titanate crystals by terahertz time-domain spectroscopic ellipsometry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SPPA02-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/aba2c1	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 V. Sivasubramanian and S. Kojima	4. 巻 59
2. 論文標題 Acoustic phonon anomalies in Ca doped SrTiO ₃ quantum ferroelectrics as studied by Brillouin light scattering	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SKKA10-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ab8a08	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 S. Kojima, Y. Hidaka, S. Tsukada, Y. Bing, and Z.-G. Ye	4. 巻 556
2. 論文標題 Brillouin scattering studies of ordered Pb(Sc _{1/2} Nb _{1/2})O ₃ crystal with vacancies	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Ferroelectrics	6. 最初と最後の頁 44-50
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00150193.2020.1713341	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 M. M. Rahaman, S. Tsukada, S. Svirskas, J. Banyas, and S. Kojima	4. 巻 538
2. 論文標題 Vibrational Dynamics of Ferroelectric K(Ta _{1-x} Nb _x)O ₃ Studied by Inelastic Light Scattering	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Ferroelectrics	6. 最初と最後の頁 96-104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00150193.2019.1569991	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 S. Kojima, Md Aftabuzzaman, J. Dec, and W. Kleemann	4. 巻 58
2. 論文標題 Ferroelectric phase transitions of uniaxial Sr _{1-x} BaxNb ₂ O ₆ and their composition variation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 SLLA02 -1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab362b	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 N. K. Derets, A. I. Fedoseev, P. P. Syrnikov, S. G. Lushnikov, and S. Kojima	4. 巻 126
2. 論文標題 Temperature behavior of long-wave acoustic phonons in relaxor ferroelectric Na _{1/2} Bi _{1/2} TiO ₃	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 174102-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5113953	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 F. U. H. Naqvi, J. W. Lee, J.-H. Ko, W. Chen, A. A. Bokov, Z.-G. Ye, S. Tsukada, and S. Kojima	4. 巻 1900987
2. 論文標題 T* of Relaxor Ferroelectric (1-x) Pb(Zn _{1/3} Nb _{2/3})O _{3-x} PbTiO ₃ Single Crystals Revisited Using Brillouin Spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Status Solidi A	6. 最初と最後の頁 1900987-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.201900987	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 M. Aftabuzzaman, M. A. Helal, R. Paszkowski, J. Dec, W. Kleemann, and S. Kojima	4. 巻 57
2. 論文標題 Electric field effect on polar nanoregions of uniaxial ferroelectric SBN	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 07LB11-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.57.07LB11	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 2.S. Kojima, Md. Rahaman, R. Sase, T. Hoshina, and T. Tsurumi	4. 巻 57
2. 論文標題 Vibrational dynamics of ferroelectric K(Ta _{1-x} Nb _x)O ₃ studied by far-infrared spectroscopic ellipsometry and Raman scattering	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 11UB05-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.57.11UB05	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 Md Al Helal, S. Tsukada, S. Svirskas, J. Banys, and S. Kojima	4. 巻 57
2. 論文標題 Angle-resolved polarized Raman scattering on relaxor ferroelectrics with intermediate random fields	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 11UB08-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.57.11UB08	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 S. Kojima and M. Maczka	4. 巻 524
2. 論文標題 Broadband phonon-polariton dispersion relation of ferroelectric LiTaO ₃ crystals	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Ferroelectrics	6. 最初と最後の頁 124-131
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00150193.2018.1470825	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 S. Kojima, J. Zushi, Y. Noguchi, and M. Miyayama	4. 巻 532
2. 論文標題 Successive phase transition of lead-free ferroelectric sodium potassium niobate crystals studied by Raman scattering	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Ferroelectrics	6. 最初と最後の頁 183-189
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00150193.2018.1430443	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. Aftabuzzaman, M. A. Helal, R. Paszkowski, J. Dec, W. Kleemann, and S. Kojima	4. 巻 7
2. 論文標題 Electric field and aging effects of uniaxial ferroelectrics $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$ probed by Brillouin scattering	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 11615
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-017-10985-9	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 Shinya Tsukada, Kenji Ohwada, Hidehiro Ohwa, Shigeo Mori, Seiji Kojima, Naohiko Yasuda, Hikaru Terauchi and Yukikuni Akishige	4. 巻 7
2. 論文標題 Relation between Fractal Inhomogeneity and In/Nb-Arrangement in $Pb(In_{1/2}Nb_{1/2})O_3$	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 17508
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-017-17349-3	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 Ghulam Shabbir, Seiji Kojima, and Jae-Hyeon Ko	4. 巻 71
2. 論文標題 Field-Induced Dielectric Anomalies and Aging Behavior in $(1-x)Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-xPbTiO_3$ Single Crystals with $x = 0.33$	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the Korean Physical Society	6. 最初と最後の頁 974 - 978
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3938/jkps.71.974	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 Md Aftabuzzaman, Md Al Helal, Jan Dec, Wolfgang Kleemann, and Seiji Kojima	4. 巻 56
2. 論文標題 Electric field effect on elastic properties of uniaxial relaxor SrxBa1-xNb2O6 single crystals with strong random fields	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 10PC06
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.56.10PC06	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 M. M. Rahaman, T. Imai, T. Sakamoto, and S. Kojima	4. 巻 111
2. 論文標題 Electric field induced critical points and field gradient by trapped electrons in Li-doped KTa1-xNbxO3 single crystals	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 32904
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4993915	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 E. Dul'kin, S. Kojim, and M. Roth	4. 巻 269
2. 論文標題 Strong anisotropy of electric field effects on uniaxial relaxor ferroelectric Sr0.75Ba0.25Nb2O6 crystals proved by acoustic emission	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Solid State Communications	6. 最初と最後の頁 78-80
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ssc.2017.10.017	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 Md. Mijanur Rahaman, Tadayuki Imai, Tadashi Sakamoto, Md. Al Helal, Shinya Tsukada, and Seiji Kojima	4. 巻 735
2. 論文標題 Ferroelectric phase transition of Li-doped KTa1-xNbxO3 single crystals with weak random fields: Inelastic light scattering study	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 1063-1070
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2017.11.039	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

〔学会発表〕 計17件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 15件）

1. 発表者名 小島 誠治, Venkatasubramanian Sivasubramanian
2. 発表標題 SrTiO ₃ 結晶の構造相転移の弾性異常と元素添加効果
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小島 誠治、岩本 敏志、佐藤 幸徳
2. 発表標題 テラヘルツ時間領域分光エリプソメトリーによるAサイト置換量子常誘電体SrTiO ₃ 結晶の研究
3. 学会等名 第37回強誘電体応用会議（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小島 誠治、Md Aftabuzzaman、Jan Dec、Wolfgang Kleemann
2. 発表標題 Sr _{1-x} BaxNb ₂ O ₆ の一軸性強誘電相転移と組成依存性
3. 学会等名 第36回強誘電体応用会議（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Kojima, Y. Hidaka, S. Tsukada, Y. Bing, and Z. -G. Ye
2. 発表標題 Brillouin Scattering Studies of Ordered Pb(Sc _{1/2} Nb _{1/2})O ₃ Crystal with Vacancies
3. 学会等名 Joint ISAF-ICE-EMF-IWPM-PFM meeting 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Venkatasubramanian Sivasubramanian, and Seiji Kojima
2. 発表標題 Acoustic phonon anomalies in Ca doped SrTiO ₃ quantum ferroelectrics as studied by Brillouin light scattering
3. 学会等名 第40回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小島 誠治, Venkatasubramanian Sivasubramanian
2. 発表標題 Ca添加SrTiO ₃ 結晶の構造相転移のブリルアン散乱
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小島誠治
2. 発表標題 Electric Field Induced Elastic Anomaly in Uniaxial Relaxor Sr _{0.70} Ba _{0.30} Nb ₂₀₆ Single Crystals
3. 学会等名 the 14th Russian/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity (RCBJSF2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Md Helal
2. 発表標題 Angle resolved polarized Raman scattering on relaxor ferroelectrics with intermediate random fields
3. 学会等名 2018 ISAF-FMA-AMF-AMEC-PFM (IFAAP2018) Joint Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小島誠治
2. 発表標題 Vibrational dynamics of ferroelectric $K(\text{Ta}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{O}_3$ studied by far-infrared spectroscopic ellipsometry and Raman scattering
3. 学会等名 2018 ISAF-FMA-AMF-AMEC-PFM (IFAAP2018) Joint Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小島誠治
2. 発表標題 Terahertz Polariton Dispersion in Uniaxial Optical Crystals
3. 学会等名 Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Md Aftabuzzaman
2. 発表標題 Effect of electric field on uniaxial relaxor ferroelectric SBN
3. 学会等名 The 39th Ultrasonic Electronics Symposium, USE2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小島誠治
2. 発表標題 Elastic Anomaly of Uniaxial Ferroelectric Strontium Barium Niobate with Very Weak Random Fields
3. 学会等名 The 39th Ultrasonic Electronics Symposium, USE2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Md Aftabuzzaman
2. 発表標題 Electric Field Induced Elastic Anomaly in Uniaxial Relaxor Sr _{0.70} Ba _{0.30} Nb ₂ O ₆ Single Crystals
3. 学会等名 第34回強誘電体応用会議FMA2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Md Aftabuzzaman
2. 発表標題 Effect of electric field on 180° domain switching in uniaxial Ca _{0.30} Ba _{0.70} Nb ₂ O ₆ crystals studied by Brillouin scattering
3. 学会等名 第14回強誘電体国際会議IMF2017 (国際会議) 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Md Aftabuzzaman
2. 発表標題 Electric field effect on polar nanoregions of uniaxial ferroelectric Sr _x Ba _{1-x} Nb ₂ O ₆ with weak random fields studied by Brillouin scattering
3. 学会等名 第38回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウムUSE2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小島誠治
2. 発表標題 Uniaxial Relaxor Ferroelectrics with Filled and Unfilled Tungsten Bronze Structure
3. 学会等名 第4回先端電子材料国際会議ICAE2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小島誠治
2. 発表標題 一軸性リラクサー強誘電体SBNの電場効果と時効
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018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
研究分担者	松石 清人 (Matsuishi Kiyoto) (10202318)	筑波大学・数理物質系・教授 (12102)	
研究分担者	塚田 真也 (Tsukada Shinya) (90570531)	島根大学・学術研究院教育学系・准教授 (15201)	

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