

氏名・(本籍)	きた 北	むら 村	けん 健	じ 二
学位の種類	理	学	博	士
学位記番号	理	第	736	号
学位授与年月日	昭和58年5月25日			
学位授与の要件	学位規則第5条第2項該当			
最終学歴	昭和49年3月 東京大学大学院理学系研究科 (修士課程)地質学専攻修了			
学位論文題目	Photoelastic Study on Synthetic and Natural Garnets —with special reference to chemical and structural imperfections— 人工及び天然産ガーネットに見られる光弾性効果の研究 ——特に結晶の化学的構造的不完全性に関連して——			
論文審査委員	(主査) 教授 砂川 一郎      教授 荳木 浅彦 教授 青木 謙一郎 教授 小松 啓 助教授 秋月 瑞彦			

## 論 文 目 次

Abstract

Acknowledgements

Contents

Introduction

PART I : General Review on Characterization Using Polarizing Light

I-1 : Introduction

I-2 : General description on photoelasticity

I – 3 : Equipments for photoelastic study of garnets

I – 4 : Application to characterization of synthetic garnets

PART II : Photoelastic Study on Synthetic Garnets

II– 1 Birefringence associated with growth striations

II– 2 Birefringence associated with facets of garnets grown from the melt

II– 3 Birefringence associated with crystal defects in synthetic garnets

II– 4 Summary —characterization by polarized light—

PART III : Photoelastic Study on Natural Garnets

III– 1 Introduction

III– 2 General review on birefringence observed in natural garnets

III– 3 Birefringence observed in natural garnets

III– 4 Summary —geological meaning of the photoelastic studies on natural garnets—

APPENDIX I : Growth techniques of rare-earth garnets in this study

APPENDIX II : Origins of difference in lattice spacings between on-facet and off-facet  
regions of rare-earth garnets grown from the melt

List of References

## 論文内容要旨

本研究は、種々の方法(CZ法、FZ法及びフラックス法)で育成された人工希土類ガーネット単結晶中の不完全性に由来する応力複屈折を観察・解析し、その組成的構造的な不完全性の導入機構を明らかにする事が目的であり、その結果から応力複屈折法(光弾性観察法)の単結晶評価への応用を試みたものである。と同時に、19世紀後半から注目され、最近になり著しい発展を示しつつある天然産ガーネットの“光学異常”の問題にこの光弾性効果がどのような役割を果たしているかを示す事も目的としている。

1970年以降、YIG(イットリウム鉄ガーネット)が磁気バブル記憶素子として注目され、又YAG(イットリウムアルミニウムガーネット)がレーザー発振素子として応用されるようになり、各種希土類ガーネットの育成及び評価は現在に至るまで盛んに行われている。特に光弾性観察法による、これら人工ガーネット単結晶中の包有物や転位に伴う応力複屈折の解析は、YIG薄膜結晶用基板として使われているGGG(ガドリウムガリウムガーネット)の評価法として応用されてきている。しかし、重要な欠陥でもある成長縞や、ファセットに伴う応力複屈折の解析は不十分であった。特にそれらに伴って現われている複屈折の大きさ( $\Delta n$ )や偏光の振動方向( $X'$ 及び $Z'$ )の持つ意味の解釈がほとんど行われていなかった。本研究では、従来の偏光顕微鏡よりも優れた消光比を持つ、レクチファイヤー高性能偏光顕微鏡(日本光学・商標名)を応力複屈折の観察、測定に活用し、又、絞ったレーザー光を利用したセナルモンの方法を応用して、複屈折の point by point 分析を可能にした。これらの方法によって欠陥の周囲に現われる複屈折の様相の観察、定量を通じて $\Delta n$ 、 $X'$ 及び $Z'$ の持つ意味を明確に示す事ができた。

人工ガーネット中に応力複屈折を起こす主な不完全性は、3種類に大別する事ができる。第一は、成長縞で、これは結晶成長時の成長速度が変動する事によって発生し、組成の不均一性を伴っている。第二は、ファセットでファセットとオフファセットでは、成長メカニズムが異なる為に両域で格子の大きさが違っている。第三は、その他、包有物や転位で、それら3種類の欠陥に伴う応力複屈折を詳細に観察し以下のような結果が得られた。

第一に成長縞に伴う複屈折の解析からは、格子の大きさの違うガーネットが成長する場合、成長面に平行な方向ですでに成長したガーネットの格子の大きさに合わせながら成長する為に、平面歪が生じ、その結果が応力複屈折となって現われている事が示されている。この事から複屈折の大きさ( $\Delta n$ )と偏光の振動方向( $X'$ 又は $Z'$ )が、成長縞が形成される際の非定常状態での特定成分の偏析過程を表現している事が認められる。すなわち $\Delta n$ は成長縞に伴った組成変動の大きさをそして $X'$ 、 $Z'$ は育成した結晶の格子がすでに育成した下地結晶の格子よりも大きいか又は小さいかを示している。

第二にファセットに伴う複屈折の観察からは、セナルモンの方法による point by point 分析を駆使して、ファセットとオフファセット領域での成長機構の違いを反映した両域での格子の大きさの違いによって生じる応力分布を解析する事ができた。又、ファセットに伴う応力複屈折は、

希土類(鉄ガーネットを除いて)に共通して同じ程度である事、育成の雰囲気、育成後の熱処理に影響されない事、ファセットのサイズに依存している事等の特徴を有している事が確かめられた。これらの事から、ファセット-オフファセット両域の格子の大きさの違いが、希土類ガーネットの不定比組成に由来しているというモデルが示された。

第三に個々の欠陥(包有物 転位等)に伴う応力複屈折の観察では、Brace-Köhler コンペンセーターを装備したレクチファイヤー偏光顕微鏡による観察の有効性を実証した。特に Brace-Köhler コンペンセーターによってレターデーションを加減して複屈折像にコントラストをつける事が出来、転位のような微弱な複屈折しかささないものでも、検出可能にしている。この方法によって本研究では NdGG(ネオジニウム ガリウムガーネット)中のヘリカル転位が、Burgers' ベクトルとらせん転位の伸長方向との角度や、場の歪に影響されて形成される様子が明らかになった。

以上の観察から、偏光を使用した光弾性的手法によって、他の単結晶評価法(X線トポグラフィ、エッチング法等……これらは、歪の連続した変化を表わす事ができない。)によるものとは違う内容の結晶成長に対する知見を得る事ができ、評価法としての独自性を本研究は示し得た。

一方、本来光学的等方性である天然産ガーネットに見られる複屈折は「光学異常」と呼ばれ、19世紀後半から注目されその起源が論議されている。近年グランダイト系ガーネットに関してはその原因が、六配位サイトにおける Fe/Al の秩序状態によるというモデルが報告され、新たな進歩へと活気づいている問題である。

従来、このガーネットの光学異常はグランダイト系によく見られパイラルスパイト系ガーネットでは詳細な報告も少かった。本研究では長野県和田峠産のパイラルスパイト系ガーネット中で、グランダイト系に見られる光学異常と非常に類似した複屈折が観察された。 $\Delta n$ の値と EPMA による組成分析から、この複屈折が、組成変動に由来する光弾性効果と、結晶の対称性の低下(秩序状態のように構造起源)に由来する複屈折の両方の起源から成り立っていると推論された。

中竜鉱山産及び秩父鉱山産グランダイト系の光学異常は、その $\Delta n$ 値からも構造起源(たとえば Fe/Al 秩序状態)である事は認められた。本研究では、熱処理によって無秩序状態になっても、組成変動が残っている限り光弾性効果による複屈折は消滅しない事を示した。又、成長縞の様相から、グランダイト系ガーネット中の組成変動が、接触交代作用中のガーネットの成長速度の変動に由来している事が、人工ガーネットの育成に見られる現象と比較しながら推論されている。

## 論文審査の結果の要旨

応力複屈折の現象は古く Brewster 以来知られており、構造物中の歪み解析などで広く活用されてきた。同じ現象は単結晶中にもみられ、光学異常の現象として昔から注目されていた。最近では単結晶評価法の一つとして活用されるようになった。しかし、単結晶中の応力複屈折の定量的解析は今まで十分行なわれてこなかった。とくに、結晶成長に伴う成長縞やファセットなどと関係した微弱な応力複屈折の解析は不十分であった。

北村は、レクチファイヤー高性能偏光顕微鏡、絞ったレーザー光を利用したセナルモンの方法などの新しい手法を用いて、複屈折の大きさ、偏光の振動方向などを詳細かつ定量的にしらべ、その結果と結晶中の組成変動や構造的な不完全性、格子サイズ変動などを関連づけることに成功した。しらべた結晶は、CZ 法、FZ 法、フラックス法で育成した人工希土類ガーネット単結晶と、パイラルスパイト系(和田峠産)とグランダイト系(中竜鉱山、秩父鉱山産)の天然珪酸塩ガーネットである。

北村はまず、育成条件既知の CZ 法、FZ 法、およびフラックス法で合成した人工希土類ガーネット単結晶中にみられる成長縞、ファセット、および包有物や転位に伴われる応力複屈折を解析した。

成長縞は成長速度の変動によって発生する不均一性で、これに伴われて組成と格子サイズの変動が起る。応力複屈折は、組成変動にみあうための格子サイズのマッチングに原因する平面歪によって生ずることが明らかになった。複屈折の大きさ  $\Delta n$  は組成変動の大きさ、偏光の振動方向  $X'$ 、 $Z'$  は格子サイズの大小に関係している。

ファセットに伴う応力複屈折は、point by point の分析を行なうことにより、オンファセットおよびオフファセット領域での成長機構の違いによる格子の大きさの違いによって起る現象であることが確かめられた。これは、希土類ガーネットの不定比組成に由来するというモデルで説明された。

包有物、転位等に伴われる応力複屈折は極めて微弱であるが、今回の研究により、それらを明瞭に視覚化できることが示され、転位のひろがりや場の歪との関係などが解明された。さらに上記の手法を天然ガーネットにも適用し、珪酸塩ガーネット中の応力複屈折の詳細な解析に成功した。パイラルスパイト系では組成変動および結晶の対称性低下の両者による光弾性効果で光学異常が発生すること、グランダイト系では光学異常が構造起源であることが確かめられた。さらに、この種解析をもとに、グランダイト系ガーネット中に普遍的に認められる縞模様は、接触交代作用中でのガーネット結晶の成長速度の変動によってあらわれる成長縞に対応し、その解析から、成長過程が解析できることを示した。

以上の研究結果は、結晶の評価、成長機構の解析などで重要な貢献をなすものであり、また応力複屈折を定量的に解析することに成功した点で高く評価できる。これは北村が独立して研究を行なう能力を十二分にもっていることを示している。よって、審査員一同、北村健二提出の論文を合格と判定した。