

学位論文審査報告

鷗崎, 賢一

竹川, 俊二

<https://hdl.handle.net/2324/16675>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 24 (3), pp.327-330, 2002-12. 九州大学大学院総合理工学
府
バージョン :
権利関係 :

学位論文審査報告

氏名(本籍) 鶴崎賢一(福岡県)
学位記番号 総理工博甲410号
学位授与の日附 平成14年6月21日
学位論文題目 ラングミュアー循環流の形成機構に関する研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 助教授 松永信博
(副査) 〃 教授 小松利光
(副査) 〃 〃 経塚雄策

論文内容の要旨

ラングミュアー循環流は、海洋や湖沼の水表面に風応力が作用した際に形成される風の吹送方向に軸をもつ二次循環流である。ラングミュアー循環流が形成されると、水表面付近では収束流によって泡や海藻などの浮遊物が筋状のパターンを描く。それぞれの筋の下では強い下降流が形成され、その最大流速は表層流速の1/3~1/4程度に達する。そのためラングミュアー循環流は混合層の形成、水表面を通しての気体輸送、浅海域における浮遊砂の輸送等において大きな役割を果たす。ラングミュアー循環流については古くから数多くの研究がなされてきた。その形成機構については Craik と Leibovich が提唱した波と流れの相互作用に基づく形成機構が通説となっているが、未だ完全に解明されたとは言えないのが現状である。本研究では、吹送流が微小擾乱を契機に不安定となり自己組織化することによってラングミュアー循環流が形成されるという考えに基づき、系統的な実験と解析を行った。その結果、ラングミュアー循環流は吹送流自体の組織化によって形成される可能性が高いことが明らかとなった。本論文はこれらの研究成果をまとめたもので、5章より構成されている。

第1章では、これまで行われた数多くの研究を紹介し、研究の背景と目的を述べた。

第2章では、風波が十分発達した場と作業流体中に界面活性剤を加えて風波の発達が抑えられた場における流れを可視化し、その結果をまとめた。トレーサーとしてコンデンス・ミルクを用いて底面付近の流れを可視化した結果、風波を伴う場合においても風波の発達を十分抑えた場合においても水槽幅方向に筋状のパターンが形成されることを見出し、いずれの場合においても吹送流中にラングミュアー循環流が形成されることを確認した。また、トレーサーとして気泡を用いた可視化実験から、水表面においても筋状のパターンが形成されることを見出し、浅海域に形成されるラン

グミュアー循環流は水表面から水槽底面に及ぶ水深スケールをもつ循環流であることを明らかにした。これらの実験結果から、ラングミュアー循環流のセルの間隔は平均水深に強く依存し、風波を伴う場合には水深の約2.5倍、風波の発達を抑えた場合では水深の2.0倍程度となることを示した。

第3章では、レーザー・ドップラー流速計を用いて流速計測実験を行い、その結果について述べた。まず、1対のラングミュアー循環流が形成される条件下において計測を行った。風波を伴う場合、水槽中央部で上昇流、側壁近傍で下降流をもつ1対の循環流が形成することを明らかにし、可視化実験結果と循環流の向きが一致することを確かめた。循環流の最大下降流速は表層流速の1/3~1/4程度であることを示し、これまでの観測結果と定量的に類似した特性をもつことを示した。風波の発生を抑えた場合においても1対の循環流が形成することを見出した。しかしながら、その最大下降流速は風波を伴う場合の1/2程度であり、循環流の流速はかなり弱くなることを見出した。ラングミュアー循環流は吹送流がもつ運動量を鉛直方向に輸送する上で極めて重要な役割を果たし、上昇流が形成される場所では吹送流の流速は減少し、下降流が形成される場所では増加することを示した。この傾向は風波が発達している場合に顕著に現れることを明らかにした。吹送流の横断方向分布はラングミュアー循環流の形成により周期的に変化することが示された。その変化は循環流が強い場合、つまり風波が発達している場合の方が大きくかつ安定していることを確かめた。

第4章では、数値計算によりラングミュアー循環流のシミュレーションを行った。シミュレーションにおいては3次元ラージ・エディ・シミュレーションを用い、水表面に風応力は作用するが水面動揺は発生しないモデルを用いた。水槽幅に対する水深の比を種々変えることで1対、2対、3対のラングミュアー循環流の形成を再現することができた。この結果は、ラングミュアー循環流の形成において波と流れの相互作用が主たる要因でないことを示唆するものである。また、流速計測の実験結果と解析結果とを比較することにより、解析結果は十分精度良く吹送流の流速分布を再現していることが確かめられた。解析結果による循環流のセルの間隔は水深の約1.8倍であり、可視化実験で得られた風波が存在しない場合のセルの間隔とよく一致していることが明らかとなった。さらに、両側の側壁境界条件を周期境界条件とすることにより解析を行った。周期境界条件においても循環流の形成が確かめられ、実験室系で観察されるラングミュアー循環流の形成には水槽側壁の存在は本質的でないことを明らかにした。

第5章では以上の結果を総括し、ラングミュアー循環流は微小擾乱を契機として不安定化した吹送流自体の組織化によって形成される可能性が高いことを述べて本論文の結論とした。

論文調査の要旨

ラングミュアー循環流は、海洋や湖沼の水表面に風応力が作用した際に形成される風の吹送方向に軸をもつ二次循環流である。ラングミュアー循環流が形成されると、水表面付近では収束流によって泡や海藻などの浮遊物が筋状のパターンを描く。それぞれの筋の下では強い下降流が形成され、その最大流速は表層流速の1/3~1/4程度に達する。そのためラングミュアー循環流は混合層の形成、水表面を通しての気体輸送、浅海域における浮遊砂の輸送等において大きな役割を果たす。ラングミュアー循環流については古くから数多くの研究がなされてきた。その形成機構については Craik と Leibovich が提唱した波と流れの相互作用に基づく形成機構が通説となっているが、未だ完全に解明されたとは言えないのが現状である。本研究は、吹送流が微小擾乱を契機に不安定となり自己組織化することによってラングミュアー循環流が形成されるという考えに基づき、系統的な実験と数値シミュレーションを行い、その考えの妥当性を検討したもので、得られた主な結果は、以下の通りである。

- (1) 風波が十分発達した場と作業流体中に界面活性剤を加えて風波の発達を抑えた場における流れを可視化した結果、いずれの場合においても水槽底面において水槽幅方向に筋状のパターンが形成されることを見出し、吹送流中にラングミュアー循環流が形成されることを確認している。
- (2) トレーサーとして気泡を用いた可視化実験から、水表面においても筋状のパターンが形成されることを見出し、浅海域に形成されるラングミュアー循環流は水表面から水槽底面に及ぶ水深スケールをもつ循環流であることを明らかにしている。
- (3) 可視化実験の結果から、ラングミュアー循環流のセルの間隔は平均水深に強く依存し、風波を伴う場合では水深の約2.5倍、風波の発達を抑えた場合では水深の2.0倍程度となることを示している。
- (4) 風波を伴う場合、循環流の最大下降流速は表層流速の1/3~1/4程度であることを示し、これまでの観測結果と定量的にはほぼ一致した特性をもつことを示している。一方、風波の発生を抑えた場合においては最大下降流速は風波を伴う場合の1/2程度であり、循環流の鉛直流速はやや弱くなることを見出している。
- (5) ラングミュアー循環流は吹送流がもつ運動量を鉛

直方向に輸送する上で極めて重要な役割を果たし、上昇流が形成される場所では吹送流の流速は減少し、下降流が形成される場所では増加することを示している。ラングミュアー循環流の形成によって吹送流の横断方向分布は周期的に変化することを明らかにしている。さらに、その周期的変化は風波が発達している場合の方が風波の発達を抑えた場合に比べて大きくかつ安定していることを明らかにしている。

- (6) ラングミュアー循環流の形成機構において、風波の存在は本質的な役割を果たしていないことを明確にするために、水面変動を考慮しないモデルを用いてラングミュアー循環流の数値シミュレーションを行っている。まず、流速計測の実験結果と解析結果とを比較することにより、解析結果は実験で得られた流速分布を再現していることが確かめられている。また、水槽幅に対する水深の比を種々変えることで1対、2対、3対のラングミュアー循環流の形成を再現している。
- (7) 両側に課した壁境界の代わりに周期境界を用いてシミュレーションを行い、循環流の形成を確かめ、実験室系で観察されるラングミュアー循環流の形成には水槽側壁の存在は本質的でないことを明らかにしている。

以上の結果を総括すれば、本研究は、実験と数値シミュレーションによってラングミュアー循環流の特性を明らかにするとともに、風波が存在しなくても微小擾乱を契機に不安定化した吹送流が自己組織化することによって循環流が形成されることを示唆したものであり、流体力学、海岸工学、海洋物理学上寄与するところが大きい。よって本論文は博士(工学)の学位論文に値するものと認める。

氏名(本籍) 竹川 俊二 (山梨県)
 学位記番号 総理工博乙327号
 学位授与の日附 平成14年7月19日
 学位論文題目 強誘電体単結晶の単結晶育成と特性改善

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 北村 健二
 (副査) 〃 〃 森 永 健 次
 (副査) 〃 〃 阿 部 弘
 (副査) 〃 助教授 大 瀧 倫 卓

論文内容の要旨

今世紀では、高度に情報化された「マルチメディア」

社会が展開される見通しである。よってますます光通信・光情報処理分野での技術開発が重要となり、光に対し多岐にわたる機能、効果をもつ酸化物光学単結晶の研究が不可欠となっている。特に、最近著しく進展している波長変換素子、光変調素子、光画像演算素子、光記憶素子などに応用される強誘電体単結晶材料は、本分野のキーマテリアルとなっている。

強誘電体結晶材料の中でも、ペロブスカイト構造を持つチタン酸バリウム、ニオブ酸カリウムやタングステンブロンズ構造を持つニオブ酸ストロンチウム・バリウム及びそれらの固溶体単結晶に優れた特性を見いだす事ができ、それらの応用への可能性については多くの報告がある。しかしながら、これらの単結晶材料は育成が困難であることでもよく知られており、大型で良質な単結晶を入手するのは極めて難しい。高度な光機能を求める背景から、結晶材料に求める特性、品質はますます厳しいものとなっている。これらの材料についても、従来技術により育成される単結晶の質的限界を超えるべく、育成技術におけるブレークスルーがますます必要となっている。

本研究で扱うニオブ酸ストロンチウム・バリウム ($(\text{Sr}, \text{Ba})\text{Nb}_2\text{O}_6$: 以下 SBN と略記) は、強誘電体結晶のなかでも非常に大きな電気光学効果を有し、光変調材料やフォトリフラクティブ材料として期待されてきた。しかし連続固溶体のため組成変動によるストリエーション(成長縞)が育成中に入りやすく、これにより結晶中に屈折率変動があらわれ、実用化では常に問題とされていた。

一方、ニオブ酸リチウム (LiNbO_3 : 以下 LN と略記) は、特性上では他の材料を圧倒する材料ではないが、大型で均質な結晶ができることに関しては、もっとも優れている。安定した材料特性と量産性から圧電材料としてはすでに確立された材料であるが、光機能への応用では特性に様々な限界がある。近年、光機能特性がニオブ酸リチウムの不定比欠陥密度に強く影響されていることがわかり、不定比欠陥密度を制御した高品質単結晶育成方法の開発は重要な課題となっている。

以上の背景から、本論文は、上記2つの強誘電体結晶に注目し、材料の性質を再検討しながら、均質で優れた光機能特性を有する結晶を育成すべく技術開発を中心テーマとしている。特に、SBNの育成ではステパノフ法を適用し、ルツボを二重にすることで温度変動を押さえ、ストリエーションのない結晶を育成することに挑戦し、成功した。また、LNの育成では、不定比欠陥を制御するため、著しくLi過剰の組成融液から単結晶を育成した。ここでは、溶液からの成長になり、育成速度を極端に遅くするため、従来の自動直径制御システム(以下 ADC と略記)の適用は困難で、

直径制御に新たなアルゴリズムを導入することで高精度の自動育成を行った。

本論文の構成は、第1章のイントロダクションに引き続き、第2章では、SBNの高品質化をテーマとしている。ここでは、最初にフローティングゾーン法でSBN単結晶を、広い組成範囲に渡って育成し、育成した単結晶中の欠陥を観察した。また、結晶成長実験の終わりに、メルトゾーンを徐冷し、析出物を分析し、その関係からコングルーエント組成(一致熔融組成とも呼ぶ)を検討し、 $(\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{O})_{0.5015}(\text{Nb}_2\text{O}_5)_{0.4985}$ という結果を得ている。この正確なコングルーエント組成を利用することにより、単結晶育成は非常に安定した。

育成した結晶の透過率、屈折率を測定し、濃度の依存性について検討した。異常光に対する濃度の依存性は以下のように示している。

$$n_e = 2.2569 - 0.022314x + 0.10231x^2, \\ 0.75 \geq x \geq 0.40, y = 0.5$$

ここで、 n_e は異常光に対する屈折率、 x, y はSBNを $(\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{O})_{1-y}(\text{Nb}_2\text{O}_5)_y$ と表したときの x, y である。この関係は、ステパノフ法で育成した結晶中の屈折率変動から組成変動を評価するために、2.8章において使用された。2.7章ではステパノフ法を導入してSBN単結晶を育成した結果を記述している。育成した結晶中には屈折率変動が存在したが、ステパノフ法のダイの温度変動を押さえるために内ルツボを導入し、ルツボを二重にすることで、屈折率変動のほとんどない単結晶を育成することができた。2.9章では2.3章と2.7章で育成した単結晶を用いて自発分極、反転閾値の濃度依存性を測定した。また、SPMを用いてドメインの観察を行い、ドメインサイズが組成により、数10~数100nmの範囲で変化することを示した。また、SPM下の分極反転では数100nmのドメインを作成することができた。このような、SBNの小さなドメインサイズと小さな反転閾値は、この材料のナノサイズドメインエンジニアリングの対象物質としての可能性を示しており、新しいデバイスへの応用が期待できる。

第3章では、不定比欠陥濃度を制御した定比ニオブ酸リチウム(SLNと略記)の単結晶育成について述べている。SLNは、従来材料であるコングルーエント組成結晶($\text{Li}_{0.48}\text{Nb}_{0.52}\text{O}_3$: CLNと略記)の不定比欠陥密度を1桁ほど低減した材料で、それに伴い、電気光学定数が数10%、分極反転電界(抗電界)が5~10分の1に減少した優れた特性を持つ材料である。しかし、この材料の歴史は新しく、育成技術は必ずしも確立されていない。

まず、3.3章に於いて、高精度ADCシステムの試作について言及している。以後の育成実験は、ここで試

作した高精度 ADC システムを使用して自動化している。3.4章では、SLN の対光損傷性を改善した SLN 単結晶を開発するための、MgO を添加した単結晶を育成について述べるとともに、SLN に Tb_4O_7 と Fe_2O_3 を添加したホログラム記憶材料の開発を目指した育成についても述べている。

SLN 単結晶育成の特徴の一つは、as-grown 結晶でもポーリング不要の単分域化されていることで結晶が得られることで、このような結晶の得られる育成条件について3.4.6で述べる。また、SLN 育成時に発生する成長双晶と基結晶との関係、成長双晶の結晶学的性質については3.4.7で言及している。

最後に、4章で本研究全体について総括し、残された問題と今後の展望について記述する。

論文調査の要旨

インターネットの普及は、膨大な情報の迅速・容易な交換を可能にしている。これに伴い取り扱う情報は飛躍的に増大し、従来の通信網より更に高速な光通信網が整備されつつある。数年後には各家庭の通信末端まで高速光通信網が張りめぐらされると予測されている。このような環境では電気光学効果を利用した光変調器、焦点可変プリズム、光スイッチ、ホログラム光記録材料、非線形光学効果を利用した波長変換素子など、強誘電体単結晶を利用した素子が重要な役割を果たしてゆくであろうことは想像に難くない。

本学位論文では、非常に優れた電気光学特性等を持つが、結晶中の屈折率変動のために実用化が阻まれてきたニオブ酸ストロンチウムバリウム（略称 SBN）と、電気光学定数は大きくはないが高速光変調が可能で非線形光学定数が無機単結晶中最大であるが不定比欠陥制御に難しさがある定比ニオブ酸リチウム（略称 SLN）の二つの強誘電体単結晶に注目している。これら材料の高品質化を実現すれば、新たな応用が開けるといった観点から、材料の特性を評価しながら均質で優れた光機能特性を有する結晶の育成技術開発を中心テーマとしている。本論文で得られた主な成果は以下の通りである。

SBN に関する研究では、

- ①集光型フローティングゾーン法で様々な組成の SBN 単結晶を育成し、結晶組成と屈折率の関係を明らかにし、 $n_e=2.2569-0.022314x+0.10231x^2$ 、 $0.75 \geq x \geq 0.40$ 、 $y=0.5$ となることを示した。ここで n_e は異常光に対する屈折率、 x, y は SBN を $(Sr_xBa_{1-x}O)_{1-y}(Nb_2O_5)_y$ と表したときの x, y である。
- ②同法で均一組成結晶を育成するための一致溶融組成を検討し、その組成が $(Sr_{0.61}Ba_{0.39}O)_{0.5015}(Nb_2O_5)_{0.1985}$ であると決定した。

③この組成を用い、坩堝を二重にして単結晶育成時の温度変動を極力抑えたステパノフ法を開発し、均質性の非常に高い単結晶育成に成功した。育成した結晶内の屈折率変動は最大 3×10^{-5} 程度で、この値は従来の結晶で観察される屈折率変動の約 3 分の 1 以下である。結晶組成と屈折率の関係から、屈折率変動の原因となる結晶内組成変動は上記 x が 3×10^{-5} 程度以下であると推定された。

④育成した結晶の分極を制御する目的から、自発分極、分極反転電界閾値の組成依存性等を最初に測定した。また、走査プローブ顕微鏡を用いて、今まで観察が困難であった SBN における 180° ドメインの観察を行った。育成後、単分域化をしていない結晶では、ドメインサイズが結晶組成に依存して数十～数百ナノメートルの範囲で変化していることを明らかにした。

⑤走査プローブ顕微鏡のカンチレバーを通して電界をかけ、顕微鏡下におけるドメインの反転を試み 300 nm の大きさのドメイン反転に成功し、SBN がナノサイズのドメインエンジニアリングに適した材料であることを示した。

SLN に関する研究では、

⑥不定比欠陥を制御した SLN 単結晶の育成では、著しく Li 過剰の組成融液から単結晶を育成する必要がある。このような溶液成長に似た条件の育成では、育成速度を極端に遅くするため、重量変化が微少で、従来の自動直径制御システムの適用は困難である。そこで、直径制御に新たなアルゴリズムを導入して高精度自動直径制御システムを開発し、SLN 単結晶の自動育成を可能にした。

⑦同装置を用いて、MgO 等を添加して耐光損傷性に優れた SLN 単結晶、Tb, Fe を添加した二色ホログラム記憶素子用の SLN 単結晶等の開発に成功した。

⑧ SLN 育成時に生成する成長双晶について、(012) を双晶面とする反射双晶であることを明らかにした。

上述のように、本研究は、特性は優れているが高品質単結晶育成が困難で、実用化が果たされていない強誘電体単結晶を、育成技術を高度化することにより実用化することを目的として遂行された。そして、屈折率変動の殆どない SBN 単結晶を育成し、光機能結晶として実用化への道を開くと共にナノメートルサイズのドメイン操作が出来ることを示して集積電気光学デバイスへの可能性を示した。また、SLN 単結晶の自動育成を可能にし、耐光損傷性にすぐれた SLN や、二色ホログラム記憶用 SLN 単結晶の開発を行っており、光機能材料工学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士（工学）の学位論文に値するものと認める。